

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

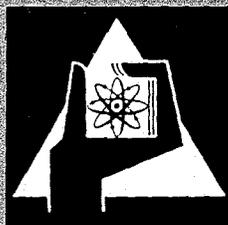
Dezember 1970

KFK 1332

Institut für Reaktorentwicklung  
Projekt Schneller Brüter

Experimentelle Untersuchung des Siedeverzuges von Natrium  
an künstlichen Oberflächenrauigkeiten

G. F. Schultheiß



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Dezember 1970

KFK 1332

Institut für Reaktorentwicklung  
Projekt Schneller Brüter

Experimentelle Untersuchung des Siedeverzuges  
von Natrium  
an künstlichen Oberflächenrauigkeiten

---

G.F. Schultheiß

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe



Experimentelle Untersuchung des Siedeverzuges von Natrium  
an künstlichen Oberflächenrauigkeiten

G.F.Schultheiß

<u>Inhalt</u>	<u>Seite</u>
1. Zusammenfassung	II
2. Einführung und Problemstellung	1
3. Versuchsaufbau	11
3.1 Testbehälter	11
3.2 Kreislaufsystem	15
3.3 Meß- und Regeleinrichtungen	22
4. Versuchsdurchführung	26
4.1 Übersicht	26
4.2 Versuchsablauf	30
4.3 Versuchsauswertung	35
4.4 Fehlerabschätzung	42
5. Ergebnisse der Versuche und Nachuntersuchungen	46
5.1 Der Einfluß der Hohlungsabmessungen	46
5.2 Der Einfluß von Oxidgehalt und Testflächenmaterial	47
5.3 Der Einfluß von gelöstem Gas	52
5.4 Metallographische und chemisch-analytische Nachuntersuchungen	56
6. Diskussion der Ergebnisse	63
6.1 Keimbildung durch Restgas	63
6.2 Keimbildung in Oberflächenschichten (1. und 2. Hypothese)	67
6.3 Theoretische Erwägung eines Flächenkeimes (3. Hypothese)	76
6.4 Hinweise für weitere Untersuchungen	79
7. Nomenklatur	82
8. Literaturverzeichnis	84
9. Anhang	

## 1. Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit behandelt die experimentelle Untersuchung thermo-hydraulischer und physikalisch-chemischer Einflüsse auf den Siedeverzug von Natrium. Eine genauere Kenntnis des Siedeverzuges ist im Rahmen von Sicherheitsuntersuchungen für schnelle natriumgekühlte Reaktoren bei der Behandlung verschiedener Unfallsituationen erwünscht, die aus Kühlungsstörungen entstehen können.

Die Versuche wurden in einer Behältersiedeanordnung durchgeführt. Die Apparatur, ein Testbehälter mit angeschlossenen Naturkonvektionskreislauf, die Schutzgasversorgung, das Heizungssystem sowie die Meß- und Regeleinrichtungen werden beschrieben. Der Versuchsablauf und die Auswertung der Meßdaten werden ausführlich dargestellt. Eine Fehlerabschätzung für die Ergebnisse zeigt, daß die Aussagen auf Grund der Meßdaten durch den Fehlerbereich nicht beeinflußt werden.

Die Versuchsparameter sind

- das Testflächenmaterial
- die Geometrie einer künstlichen Höhlung
- die Natriumoxidkonzentration.

Der Einfluß von gelöstem Argon wurde in drei Versuchsserien untersucht. Danach wurden diese Versuche abgebrochen, da die Ergebnisse unsystematisch im Streubereich der Werte ohne Argon liegen. Alle anderen Experimente wurden mit sorgfältig entgastem Natrium ohne Schutzgasdruck durchgeführt.

Als Testflächenmaterialien wurden untersucht:

rostfreier Stahl Werkstoff Nr. 4541	X 10 CrNiTi 18 9
Werkstoff Nr. 4571	X 10 CrNiMoTi 18 10

- und in besonderen Testflächen -

reines Nickel, Eisen und Chrom.

Die Geometrie der künstlichen Höhlungen - zylindrische Bohrungen - wurde in der Tiefe H und dem Durchmesser D variiert. Die Natriumoxidkonzentration wird über die Temperatur einer in den Naturumlauf eingeschalteten Kaltfalle verändert und kontrolliert.

Die Hauptergebnisse der durchgeführten Versuche sind:

- Alle untersuchten Höhlungen waren extrem stabile Siedezentren. Ihre Aktivität blieb über Monate erhalten und wurde weder durch höheren Systemdruck noch durch Dauersieden beeinflusst.
- Für heißfallengereinigtes Natrium mit sehr niedrigem Oxidgehalt ergab sich eine gute Übereinstimmung der Versuchsergebnisse mit den theoretisch aus der Gleichgewichtsbedingung zwischen Dampfdruck und Oberflächenspannung errechneten Siedeverzugs-  
werten, wenn der kritische Keimdurchmesser gleich dem Bohrungsdurchmesser gesetzt wurde.
- Eine Abflachung der Höhlungen ( $H/D < 1$ ) ergibt einen geringen Anstieg des Siedeverzuges.
- Der Siedeverzug hängt sowohl vom Oxidgehalt als auch vom Testflächenmaterial ab.
- Bei rostfreiem Stahl (kein Unterschied zwischen Nr. 4541 und Nr. 4571) hatte der Siedeverzug ein typisches Maximum bei einer Kaltfallentemperatur von etwa  $127^{\circ}\text{C}$  - entsprechend ca. 2 ppm  $\text{Na}_2\text{O}$  -, welches offensichtlich durch den Chromgehalt bewirkt wird, denn Reineisen und Nickel zeigen dieses Maximum nicht, während Chrom sich wie Stahl verhält.  
Reineisen ergab generell einen sehr niedrigen Siedeverzug, der nicht vom Oxidgehalt beeinflusst wurde. Bei Nickel fällt der Siedeverzug mit steigendem Oxidgehalt vom Wert für heißfallenreines Natrium auf einen ein drittel so großen Grenzwert, der sich auch bei Stahl einstellte.

Die Ergebnisse werden in Zusammenhang mit Lösungs- und Korrosionsvorgängen an der Materialoberfläche diskutiert. Eine mögliche Existenz von Restgaskeimen wird behandelt. In einer theoretischen Betrachtung der Ergebnisse wird der Beginn der Phasenumwandlung ausgehend von einem Flächekeim erwogen.

Weitere Untersuchungen auf dem Gebiet der Keimbildung bei Siedevorgängen in Flüssigmetallen erscheinen aus der Sicht dieser Arbeit hauptsächlich auf dem physikalisch-chemischen Gebiet über Benetzungsverhältnisse und Korrosionsvorgänge, d.h. generell über die energetischen Verhältnisse in der Grenzschicht, erforderlich.

1. Abstract

The experimental investigation of thermo-hydraulic and physico-chemical influences on incipient boiling superheat of sodium is reported. With respect to safety considerations in cases of coolant disturbances of sodium cooled fast breeder reactors a better knowledge of incipient boiling superheat is desirable.

The experiments have been performed in a pool-boiling arrangement. The equipment, a test-pool connected to a natural convection loop, cover gas supply and the electronic part for control of all heating systems and measurement techniques are described. The experimental runs and their evaluation are presented in detail. An error estimation for the results shows that the conclusions based on experimental data are not influenced by the error range.

Experimental parameters are - the test surface material  
- the geometry of an artificial cavity  
- the sodium oxide concentration.

The effect of dissolved argon has been investigated in three series of runs and then has been excluded from the program because it was very small and not systematic. All other experiments reported have been carried out in absence of any cover gas and with carefully degassed sodium.

The following test surface materials have been examined:

stainless steel No. 4541 X 10 CrNiTi 18 9  
No. 4571 X 10 CrNiMoTi 18 10

- and in special test sections -

pure nickel, iron and chromium.

The geometry of the artificial cavities - cylindrical type - has been changed in depth H and diameter D. The sodium oxide concentration has been varied and controlled by means of the cold-trap temperature. The cold-trap is part of the natural convection loop.

The main results are:

- All tested cavities were found to be extremely stable nucleation centers for months. They were not inactivated either by pressurization or by longtime boiling.
- For hot-trap purified sodium experimental results are in good agreement with theoretical values of incipient boiling superheat calculated from the vapour pressure to surface-tension equilibrium (critical radius of the nucleus equal to cavity radius).
- Decreasing of depth to diameter ratio ( $H/D \approx 1$ ) slightly increases the incipient boiling superheat.
- The incipient boiling superheat depends on oxide concentration as well as on the test-surface material.
- For stainless steel (no difference between No. 4541 and No. 4571) superheat has a typical maximum at about  $127^{\circ}\text{C}$  cold-trap temperature - corresponding to 2 ppm  $\text{Na}_2\text{O}$  - obviously caused by the chromium content. Pure iron and nickel did not show such a maximum. Pure chromium behaves like stainless steel. Pure iron shows generally very small superheat not influenced by oxide concentration. For nickel superheat decreases with increasing oxide concentration and approaches the same constant value as stainless steel.

The results are discussed with respect to solution and corrosion processes at the test surface. The possibility of the existence of entrapped gas nuclei is treated. The nucleation starting from a flat nucleus is theoretically considered.

Further investigations on nucleation in liquid metal boiling processes in this view are preferentially necessary with respect to physico-chemical conditions, the wetting behaviour and corrosion mechanisms within the liquid-solid boundary layer.



## 2. Einführung und Problemstellung

Die Untersuchung von Wärmeübertragungsprozessen mit einer Änderung des Aggregatzustandes, der Phase<sup>1)</sup>, des betrachteten Mediums ist oft mit einer phänomenologischen Betrachtung des Prozeßablaufs eng verknüpft. Die Ursache dafür ist wohl meistens die Verwendung von Medien mit günstigen optischen Eigenschaften. Verständlicherweise scheidet ein derartiges Vorgehen in der vorliegenden Arbeit aus, in der das Alkalimetall Natrium als Medium dient. Aber auch bei günstigeren Flüssigkeiten ist eine auf optischen Beobachtungen beruhende Untersuchung dann schwierig oder gar unmöglich, wenn nach dem Beginn des Phasenumwandlungsprozesses und der Bildung eines ersten existenzfähigen Keimes gefragt ist.

Aus thermodynamisch-energetischen Gründen ist für die Keimbildung zu Beginn eines Phasenänderungsvorganges eine Abweichung im betrachteten System vom Gleichgewicht der Sättigung der Ausgangsphase erforderlich. Dabei wird die Sättigungslinie unter Beibehaltung des Aggregatzustandes in Richtung der neu zu bildenden Phase überschritten. Der dann erreichte instabile Zustand wird durch die Keimbildung und das Wachstum der Keime solange abgebaut, bis die Sättigungslinie wieder erreicht wird.

Wie die experimentelle Erfahrung zeigt, hat eine Phasenänderung vorwiegend an den Grenzflächen eines Systems ihren Ursprung. Solche Grenzflächen können feste Wände sein, welche die Ausgangsphase umschließen oder die von ihr umschlossen werden. Es können aber auch freie Oberflächen oder z.B. solche von in Flüssigkeit eingeschlossenen Gasblasen sein.

Im Gegensatz zu diesen heterogenen Phasenänderungen - in einem heterogenen Volumenelement eines Systems - sind homogene Änderungen - in einem homogenen Element der Ausgangsphase - zwar von Schmelz- und Kristallisationsvorgängen her bekannt, aber gerade bei den in dieser Arbeit behandelten Siedeprozessen und auch bei der Kondensation gesättigter Dämpfe sehr selten. Von dem speziellen Fall der Verhältnisse in Blaskammern bei kernphysikalischen Messungen muß man in diesem Zusammenhang wegen der extremen Bedingungen absehen.

---

1) hier: Rein thermische Prozesse ohne chemische Umsetzungen

Die theoretischen Arbeiten auf diesem Gebiet beruhen meist auf der von Volmer und Weber [1] sowie von Becker und Döring [2] entwickelten Kinetik der Phasenbildung. Danach ist die Anzahl der Keime der neuen Phase, die pro Zeiteinheit in einem Volumenelement der alten Phase gebildet werden:

$$J = Z_1 \left( \frac{6 \sigma}{\pi m (\beta - b)} \right)^{1/2} \cdot e^{-\lambda/kT} \cdot e^{-W_n/kT} \quad (1a)$$

dabei ist

$$b = \frac{P_d - P_{fl}}{P_{fl}} \quad (1b)$$

ein druckabhängiger Parameter und

$$W_n = \frac{16 \pi \sigma^3}{3 (P_d - P_{fl})^2} \quad (1c)$$

die Oberflächenbildungsarbeit für einen Keim mit dem Radius

$$r_n = \frac{2 \sigma}{P_d - P_{fl}} \quad (1d)$$

Gleichung (1a) zeigt einerseits, daß dieser Ansatz nur für  $b < 3$  gültig ist, da sonst der Ausdruck unter der Wurzel komplex oder undefiniert wird, andererseits wird in diesem Zusammenhang die starke Abhängigkeit von der Oberflächenspannung  $\sigma$  im Faktor  $e^{-f(\sigma^3)}$  und von der Überhitzung einer Flüssigkeit deutlich. Letztere kommt in Form der Druckdifferenz  $(P_d - P_{fl})$  zum Ausdruck. Bei einem Vergleich zwischen Natrium und Wasser erhöht sich durch die etwa doppelt so große Oberflächenspannung von Natrium (alle anderen Größen gleichgesetzt) die kritische Keimbildungsenergie auf das achtfache, was die Keimbildungsrate auf Werte reduziert, die um den Faktor  $2 \cdot 10^{-4}$  kleiner sind.

Eine weitere einschneidende Veränderung stellt für den theoretischen Ansatz der Übergang von der homogenen zur heterogenen Keimbildung dar, da dort die energetischen Verhältnisse sehr viel komplizierter sind und durch die Betrachtung der Oberflächenspannung  $\sigma$  der Flüssigkeit allein nicht erfaßbar sind. Dies wird besonders deutlich durch den Unterschied zwischen Experiment und Theorie. Für Natrium bei 1 atm Systemdruck und 300°C Überhitzung steht der gemessenen Keimbildungsrate  $J \approx 10^{-1} \frac{1}{\text{sec cm}^3}$  für den heterogen ablaufenden Prozeß ein Wert von  $J = 10^{-1000} \frac{1}{\text{sec cm}^3}$  gegenüber, wenn für den gleichen Zustand nach der Theorie für homogene Keimbildung gerechnet wird.

Der Radius der Keime  $r_n$  nimmt mit steigender Überhitzung (generell: Abweichung vom Sättigungszustand) ab, vgl. Gl. (1 c), und erreicht sehr schnell Größenordnungen einiger Moleküldurchmesser. Hierdurch ist eine direkte Grenze für die Anwendbarkeit der makroskopisch definierten Oberflächenspannung gesetzt. Ähnlich wie die Halbwertszeit beim radioaktiven Zerfall stellt auch die Oberflächenspannung einen Mittelwert der statistisch verteilten Wechselwirkungen zwischen einer sehr großen Anzahl von Molekülen dar. Für kleine Volumina - nur wenige Moleküle große Löcher in einer Flüssigkeit z.B. - ist die Anwendung der Oberflächenspannung im makroskopischen Sinne nicht mehr sinnvoll [3, 4].

Neuere zusammenfassende Arbeiten [5, 6] zeigen, daß sich auf der Basis der Volmer-Weber-Becker-Döring Theorie zwar die Kondensation aus übersättigten Dämpfen behandeln läßt. Modifiziert gilt sie auch für die Kristallisation aus unterkühlten Flüssigkeiten. Bei der Blasenkeimbildung für Siedeprozesse liefert sie jedoch bis jetzt nur bei Systemzuständen in der Nähe des kritischen Punktes einigermaßen befriedigende Ergebnisse [7, 8].

Für die theoretische Behandlung von Siedevorgängen in Wasser und wässrigen oder organischen Flüssigkeiten wird generell ein Modell benutzt, dessen Keimphase im wesentlichen aus bereits vorhandenem, an einer festen Oberfläche adsorbierten oder in deren Mikrohöhlungen eingeschlossenen, ungelöstem Restgas besteht [9]. Eine Inaktivierung einer

Blasenkeimzelle während des Siedens kann nach diesem Modell mit dem Ausgasen der betrachteten Oberflächenkavität erklärt werden [10]. Die thermodynamische Berechnung der Blasendynamik geht dann von einem mit Gas-Dampf-Gemisch gefüllten sogenannten kritischen Keim aus.

Die kritische Größe eines Keimes ergibt sich aus dem Verlauf der freien Bildungsenergie

$$\Delta G = \sigma \Delta F - V \Delta p \quad (2)$$

in Abhängigkeit vom Keimvolumen bzw. Radius (bei Annahme kugelförmiger Gestalt), wie in Abb. 1 schematisch dargestellt. Bei kleinen Radien überwiegt der Oberflächenterm, nach Durchlaufen eines Maximum der Volumenterm. Bei diesem Maximum hat der Keim seine sogenannte kritische Größe erreicht, danach wächst er unter Abnahme der freien Bildungsenergie von selbst weiter.

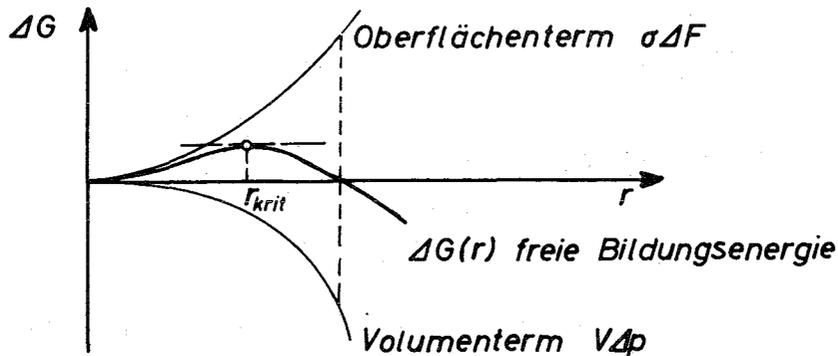


Abb. 1: Die Abhängigkeit der freien Keimbildungsenergie vom Keimradius (schematische Darstellung)

Für einen kugelförmigen Keim ergibt sich aus der kritischen Bedingung

$$\frac{d(\Delta G)}{dr} = 0 \quad (3)$$

$$= \frac{d}{dr} \left( \sigma \cdot 4 \pi r^2 - \frac{4\pi}{3} r^3 \cdot \Delta p \right)$$

der kritische Radius zu (vgl. Gl. ( 1d ) )

$$r_{\text{krit}} = \frac{2 \sigma}{\Delta p} \quad ( 4 )$$

mit

$$\Delta p = p_d + p_g - p_{fl} \quad ( 5 )$$

Bei heterogenen Phasenänderungen an einer festen Wand wird der mittlere Krümmungsradius der Oberfläche dieses kritischen Keimes nach den Ansätzen von Young und Laplace [ 11 ] aus dem Gleichgewicht zwischen den an der Keimgrenzfläche angreifenden Druckkräften und der Spannung in der Grenzflächenschicht berechnet. Dabei müssen auch die Kräfte berücksichtigt werden, die in der Berührungslinie fest / flüssig / gas- oder dampfförmig an den Grenzflächen fest / flüssig und fest / gas- oder dampfförmig wirken. Sie haben ihrer Natur nach Oberflächenspannungseigenschaften. Die Wandeinflüsse werden repräsentiert durch den Kontaktwinkel  $\theta$  oder den Benetzungskoeffizienten

$$\cos \theta = \frac{\sigma_{f,g} - \sigma_{f,fl}}{\sigma_{fl,g}} \quad ( 6 )$$

wie er sich aus den Gleichgewichtsbedingungen an einer Berührungslinien-einheit ergibt (Abb. 2).

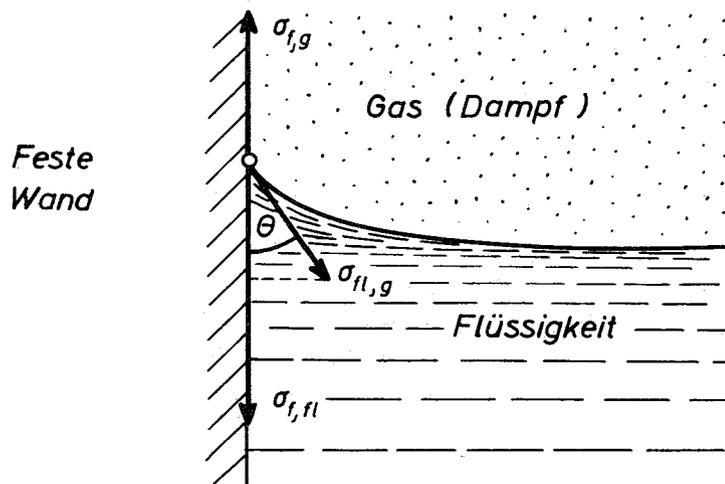


Abb. 2: Spannungsgleichgewicht an der Berührungslinie eines dreiphasigen Mehrkomponentensystems

Der kritische Keimradius wird dann im allgemeinen Fall

$$r_{\text{krit}} = \frac{2 \sigma \cdot \cos \theta}{p_d + p_g - p_{fl}} \quad (7)$$

In der freien Flüssigkeit oder bei sogenannter vollständiger Benetzung wird  $\theta$  zu Null und damit  $\cos \theta = 1$ .

Es muß an dieser Stelle darauf hingewiesen werden, daß bei derartigen Gleichgewichtsbetrachtungen - wie auch hier - das vereinfachte Modell einer mechanisch äquivalenten Oberfläche statt der realen, aber schwierig zu behandelnden Zwischenphasenschicht angewendet wird. Die auch experimentell bestimmbare Oberflächenspannung  $\sigma$  darf dabei nicht mit der Spannung in der Oberflächenschicht verwechselt werden.

Bei der Untersuchung von Siedevorgängen läßt sich der für die Bildung eines bestimmten kritischen Keimes vom Radius  $r_{\text{krit}}$  bei gegebenem Sättigungszustand (entsprechend  $T_{\text{sat}}$ ) erforderliche Überdruck ( $p_d - (p_{fl} + p_g)$ ), der durch den Dampf im Keim aufgebracht werden muß, in Form einer Temperaturdifferenz ausdrücken. Diese Temperaturdifferenz ist erforderlich als Mindestüberhitzung der flüssigen Phase zur Aufrechterhaltung des ersten entstehenden kritischen Keimes vom Radius  $r_{\text{krit}}$ . Die Berechnung erfolgt meist über eine Integration der Clausius-Clapeyron Gleichung in der angegebenen Vereinfachung

$$\frac{d p}{d T} = \frac{\Delta h \cdot \rho_{fl} \cdot \rho_d}{T (\rho_{fl} - \rho_d)} \approx \frac{\Delta h \cdot \rho_D}{T} \quad (8)$$

Durch Einsetzen in Gl. (7) ergibt sich ( $p_g = 0$  gesetzt)

$$\Delta T = T_d(p_d) - T_{\text{sat}}(p_{fl}) = \frac{2 \sigma \cdot \cos \theta \cdot T_{\text{sat}}}{r_{\text{krit}} \cdot \Delta h \cdot \rho_D} \quad (9)$$

Der bei der Integration auftretende logarithmische Term wurde durch eine Näherung ersetzt, wodurch diese Methode nur für kleine  $\Delta T$  zulässig wird. In der vorliegenden Arbeit wurde der Siedeverzug unter Verwendung analytischer Funktionen für die Dampfdruckkurve numerisch iterativ mit Hilfe von Stoffdatenprogrammen [12] berechnet. Unberührt davon bleibt die Tatsache, daß für größere Abweichungen vom Sättigungszustand die Integration nicht mehr über die Dampfdruckkurve erfolgen darf, wenn sie nicht zu Fehlern führen soll.

Da hier ganz speziell der Beginn einer Phasenänderung bei Siedevorgängen und verschiedene Einflüsse auf die Größe des Siedeverzuges untersucht wurden, wird das sich anschließende dynamische Verhalten der wachsenden Dampfblase sowie das Blasensieden allgemein nicht weiter behandelt.

Im letzten Jahrzehnt wurde die Erforschung des Wärmeübertragungsverhaltens von Wasser und organischen Flüssigkeiten besonders intensiviert durch die starke Ausweitung der friedlichen Nutzung der Kernenergie. Bei der augenblicklichen Generation der Siede- und Druckwasserreaktoren treten dabei die Probleme der Zweiphasenströmung und der kritischen Heizflächenbelastung in den Vordergrund. In der neuentwickelten fortgeschrittenen Konzeption der Brutreaktoren wird zunächst generell flüssiges Metall, das Alkalimetall Natrium, als primäres Wärmeübertragungsmedium eingesetzt. Im Zusammenhang mit Sicherheitsanalysen, die im Rahmen dieser Entwicklung durchgeführt wurden, zeigte sich, daß unter bestimmten Voraussetzungen die Höhe des auftretenden Siedeverzuges des Kühlmittels Natrium den Ablauf von Unfallsituationen beeinflusst [7,13].

Für flüssige Alkalimetalle lassen sich die in Verbindung mit Wasser genannten Annahmen über bereits vorhandene Gaskeime an der Heizfläche,<sup>1)</sup> zur Einleitung des Siedevorganges nur schwer aufrechterhalten, insbesondere da alle thermodynamischen Prozesse aufgrund der großen chemischen Aggressivität dieser Medien und ihrer hohen Siedepunkte durch zahlreiche physikalisch-chemische Reaktionen überlagert werden, die vom Zustand des gesamten betrachteten Systems abhängen. Dabei bewirkt die Koppelung von

---

1) Im strömenden Medium mitgeschwemmte Gasblasen oder aus Spaltgasen gebildete Keime sind nicht auszuschließen [28], werden aber im Rahmen dieser Arbeit nicht behandelt.

Wärme- und Stofftransport infolge der temperaturabhängigen Löslichkeit für viele Elemente und, wenn sie chemisch reagieren, deren Verbindungen eine ständige und nur in den seltensten Fällen kontrollierbare Grenzflächenveränderung. Zusammengesehen mit den langen Betriebszeiten der Systeme können Lösungsvorgänge und Massetransport zur Beseitigung von Keimzentren aus adsorbiertem, nicht reagierendem Gas oder von Oberflächenbelägen führen. Daraus resultiert eine Inaktivierung der Heizflächen, wenn man von den gleichen Keimbildungsvorstellungen ausgeht, wie bei Wasser und organischen Flüssigkeiten.

Die bis heute verfügbaren experimentellen Ergebnisse für den Siedeverzug von Alkalimetallen zeigen deutlich in widersprüchlichen Tendenzen und einer extrem großen Streuung der Werte [14], wie schwierig die Beurteilung der Einflüsse ist, die eine sehr große Zahl von Parametern mit sich bringt. Dazu gehören:

- der thermo- und hydrodynamische Systemzustand:
  - gekennzeichnet durch: Druck
  - Temperatur
  - aufgeprägter Wärmefluß
  - Reynoldszahl
  - Turbulenzgrad
  
- der physikalisch-chemische Systemzustand:
  - gekennzeichnet durch: physikalische und chemische Eigenschaften
  - aller beteiligten Phasen und dabei in besonderem Maße durch den Zustand der Berührungsfläche zwischen fester und flüssiger Phase, charakterisiert durch
  - Oberflächenrauigkeit und
  - Korrosionsverhalten
  
- Strahlungs- oder Schwerkrafteinflüsse sind weitere mögliche Parameter.

Die Untersuchung der Strahlungseinflüsse jeder Art erscheint aufgrund der Anwendung auf nuklear-technischem Gebiet besonders naheliegend. Aber sowohl theoretische [15] wie auch experimentelle Arbeiten [16, 17] zeigen, daß nur unter extremen Bedingungen eine ausreichende Energiefreisetzung durch Stoßvorgänge stattfindet, die zur Bildung eines Dampfkeimes kritischer Größe führt. Für Natrium z.B. wäre dies erst bei Systemdrücken von mehr als  $10 \text{ kp/cm}^2$  und einem Zentralstoß zwischen einem schnellen Neutron und einem Natriumatom möglich [15]. Derartige Betriebsdrücke sind aber bisher in keiner der geplanten oder gebauten natriumgekühlten Kernenergieanlagen als regulär vorgesehen.

Die vorliegende Arbeit behandelt die experimentelle Untersuchung zweier anderer Probleme aus dem Kreis der genannten Parameter:

Der Einfluß der Oberflächenrauigkeit, der in mehr genereller Form [18, 19] und unter dem speziellen Blickwinkel der Siedestabilität [20] bereits bekannt ist, soll an künstlichen Rauigkeiten mit variierte Geometrie untersucht werden.

Einen mehr physikalisch-chemisch orientierten Problembereich stellt die Untersuchung der Einflüsse des Wandmaterials und gelöster Verunreinigungen - insbesondere von Natriumoxid  $\text{Na}_2\text{O}$  - auf den Siedeverzug dar. Verunreinigungen wie  $\text{Na}_2\text{O}$  beeinflussen das Korrosionsverhalten von Wandmaterialien entscheidend [21, 22, 23]. Dadurch wird sich auch das Benetzungsverhalten an einer wärmeübertragenden festen Wand verändern, welches nach Gl. (9), repräsentiert durch den Cosinus des Benetzungswinkels  $\theta$  (vgl. auch Abb. 2), einen direkten Einfluß auf den Siedeverzug hat. Über Veränderungen der Oberflächenspannung  $\sigma$  durch gelöste Stoffe in Natrium sind bisher keine klaren Aussagen möglich. Meist wirkte sich der Oxidgehalt in Form einer erhöhten Streuung der Versuchswerte aus [24, 25], lediglich Bradhurst [26] berichtet über einen starken Einfluß. Bei diesen Untersuchungen spielt die angewandte Methode eine große Rolle, da z.B. Alterungseffekte an neu gebildeten Oberflächen zu Verschiebungen der Ergebnisse führen können [27].

In der praktischen Versuchsdurchführung überlagern sich die Parameter in den einzelnen Versuchsreihen. Durch eine geeignete Versuchsfolge war es jedoch möglich, die jeweiligen Auswirkungen zu unterscheiden. Die Beschreibung der dafür erstellten Apparatur, der Versuchsdurchführung, der Auswertung und die Versuchsergebnisse sind Gegenstand dieser Arbeit.

Die zur Durchführung der Versuche erstellte Apparatur und ihre elektrische und elektronische Ausrüstung wird im Kap. 3 beschrieben. Dabei wird auch auf spezifische Probleme der Natriumtechnologie kurz eingegangen, die ausführlich in [32] behandelt werden. Die Versuchsdurchführung einschließlich einer Erläuterung der Parameterwahl, die Auswertung und eine Fehleranalyse behandelt das vierte Kapitel. Die Ergebnisse sind unter Kap. 5 zusammenfassend dargestellt und anschließend diskutiert.

### 3. Versuchsaufbau

#### 3.1 Testbehälter

Für das vorgesehene Versuchsprogramm ist ein Strömen des untersuchten Mediums und eine diesen Zustand charakterisierende Strömungsgeschwindigkeit ein unerwünschter Parameter. Daß dadurch der Siedeverzug ebenfalls beeinflusst wird, ist experimentell bereits erwiesen [29,30], wenn auch die Mechanismen theoretisch noch nicht klar zu deuten sind. Dies war ein Grund, eine Anordnung zu wählen, in welcher der Einfluß der Strömungsgeschwindigkeit am Ort der ersten Blasenbildung bei Siedebeginn weitgehend unterdrückt wird.

Statt einer engen Rohrgeometrie und Siedebeginn an der Rohrwand wurde ein weiter Testbehälter verwendet. Die eigentliche Testfläche bildet den Boden des Behälters. Im Zentrum der Testfläche, die in allen Fällen poliert ist, befindet sich jeweils die künstliche Oberflächenrauigkeit, eine zylindrische Bohrung. Der Siedevorgang wird eingeleitet durch Wärmezufuhr von außen im Bereich der Höhlung über einen separat elektrisch beheizten sogenannten "Heißen Finger". Abb. 3 zeigt die Anordnung schematisch. Das Temperaturprofil, das sich bei Siedebeginn am oberen Ende des "Heißen Fingers" einstellt, ist qualitativ dargestellt.

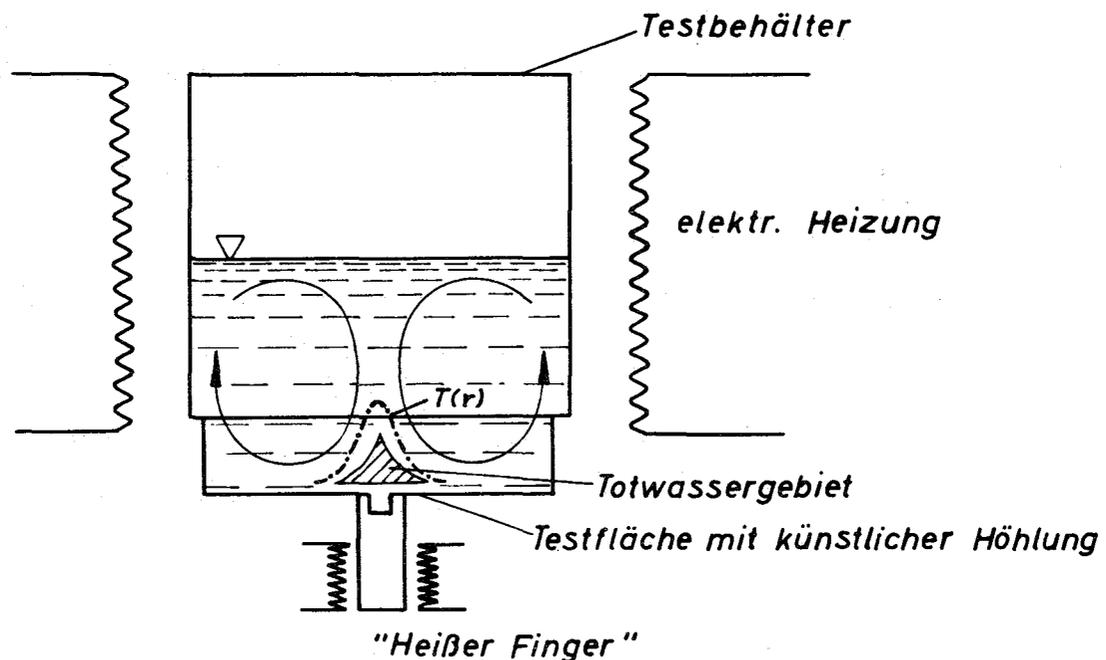


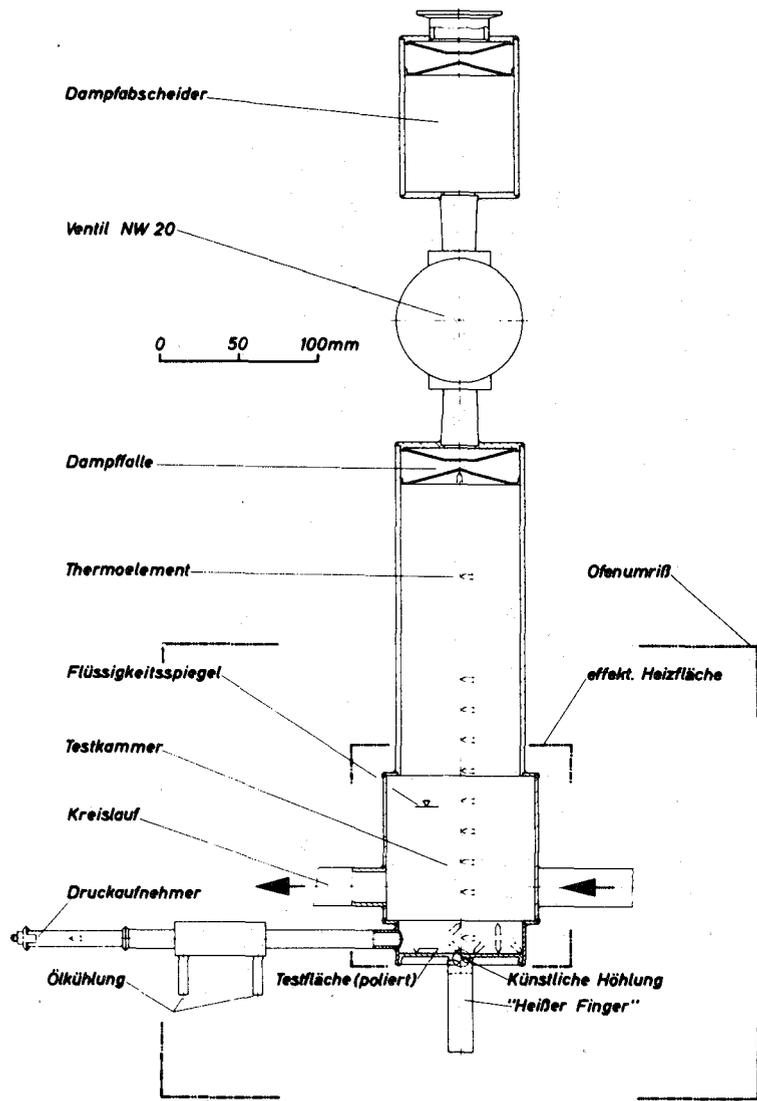
Abb. 3: Schema der Testanordnung

In zwei ähnlichen Apparaturen wurden bereits Versuche mit Wasser durchgeführt [33,34]. Diese wurden direkt und über kinematographische Aufzeichnung beobachtet. Aus der Bewegung von im Wasser enthaltenen Staubteilchen konnte dabei festgestellt werden, daß durch die Wärmezufuhr von der äußeren Schutzheizung eine nahezu symmetrische Konvektionsströmung angeworfen wurde, wie sie in Abb. 3 angedeutet ist. Am Behälterboden bildet sich ein sehr stabiles zentrales Totwassergebiet aus, das nur gelegentlichen geringfügigen Schwankungsbewegungen unterworfen ist. In diesem strömungsarmen Gebiet liegt auch bei den hier beschriebenen Natriumsiedeversuchen das künstliche Keimzentrum.

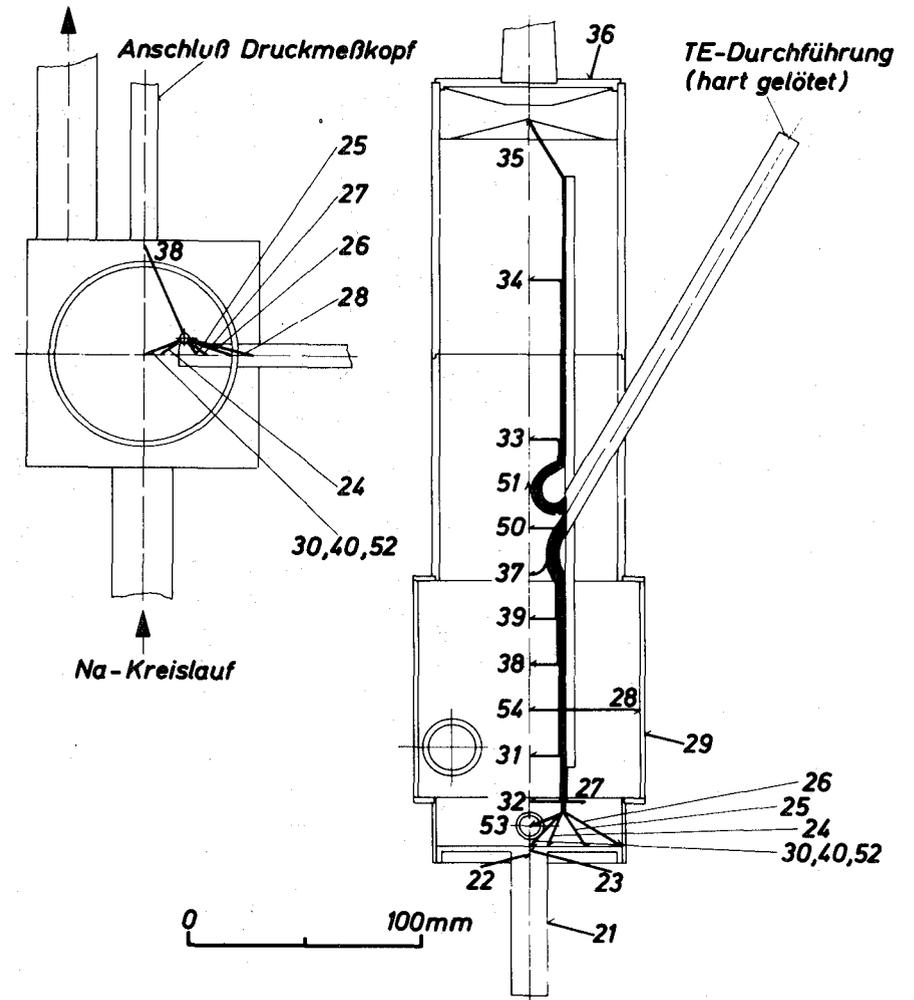
Die Konvektionsströmung wirkt sich durch Verbesserung des Wärmeüberganges in den Randbereichen des "Heißen Fingers" auch günstig auf das Temperaturprofil an der wärmeübertragenden Wand aus. Der Bereich höherer Temperatur wird in Richtung auf das Zentrum eingeschränkt. Mögliche benachbarte "natürliche" Keimzentren (Kornausbrüche, Korrosionslöcher u.a.) bleiben wegen ihrer niedrigeren Temperatur und geringeren geometrischen Abmessungen inaktiv.

Ein weiterer Vorteil dieser Anordnung ist, daß auch bei Verwendung größerer Natriummengen während der eigentlichen Versuche - der Testbehälter enthält dann ca.  $300 \text{ cm}^3$  flüssiges Na - keine allzuhohe Flüssigkeitssäule auf der Bodenplatte steht. Dies ist besonders bei Siedeversuchen mit  $T_{\text{sat}} < 600^\circ \text{ C}$  und entsprechend niedrigen Systemdrücken wichtig. Die von der freien Oberfläche zum Behälterboden auf Grund des statischen Flüssigkeitsdruckes wachsende Unterkühlung nimmt dann beträchtliche Werte an. Dieser Umstand wird bei der Versuchsauswertung (Kap. 4) entsprechend berücksichtigt.

Eine genauere Darstellung des Testbehälters gibt Abb. 4. Die Anordnung befindet sich teilweise in einem Ofen, der mit elektrischen Widerstandsheizern ausgerüstet ist. Die äußeren Umrisse sowohl der zwei Heizplatten, die vor und hinter dem Versuchsbehälter angeordnet sind, als auch des gesamten Ofenkomplexes sind in Abb. 4a mit eingezeichnet.



**Abb. 4a** Versuchsbehälter



**Abb. 4b** Meßstellenplan für Versuchsbehälter

Der aus dem Ofen ragende Kondensatorbereich dient bei einer Erzeugung des Systemdruckes durch Schutzgas (hochreines Argon) zur Rekondensation des aufsteigenden Natriumdampfes. Wird der Systemdruck durch Na-Dampf selbst erzeugt, so wird der Kondensator isoliert. Dadurch werden die Wärmeverluste (Heat-Pipe-Effekt) verringert und die Regelbarkeit des Systems über die elektrische Energiezufuhr verbessert, wie Vorversuche zeigten.

Zum Vakuum- und Gasversorgungsteil der Apparatur hin ist der Versuchsbehälter durch einen Umlenkampfabscheider und ein Faltenbalgventil NW 20 abgeschlossen. Beide sind mit dem Behälterdeckel verschweißt. Um eine zu starke Erwärmung des luftgekühlten Ventils zu vermeiden, wurde die untere Anschlußöffnung bis auf einen 2 mm breiten Schlitz verschlossen. Alle Teile sind so gestaltet, daß kondensiertes und erstarrtes Natrium bei Erwärmung nach unten abfließen kann. Verstopfungen sind so leicht zu beseitigen.

Die dem Ventil nachgeschaltete zusätzliche kalte Dampffalle hat sich insbesondere bei Transportprozeduren (Leeren und Füllen des Versuchsbehälters, Reinigung unter Gasdruck) und während der Entgasung des Natrium bewährt. Sie schützt das Vakuumsystem vor Verunreinigung durch Na-Dampf bei geöffnetem Absperrventil.

Der Siedebehälter ist in seinem unteren Teil über zwei versetzt angebrachte Rohrstützen mit einem Kreislauf mit Naturumlauf verbunden, der nachfolgend unter 3.2 beschrieben wird. Durch die asymmetrische Stützenanordnung wird die Flüssigkeit beim Durchströmen des Behälters zusätzlich verwirbelt und der Reinigungseffekt erhöht.

Die installierten Meßinstrumente - Ni-CrNi -Mantelthermoelemente und ein piezo-elektrischer Druckaufnehmer, der über eine ölgekühlte Temperaturabklingstrecke mit dem heißen Versuchsbehälter verbunden ist, - werden im Abschnitt 3.3 genauer behandelt.

Die vier gefertigten Versuchsbehälter wurden bis zum Ausfall der entscheidenden Thermoelemente mehrfach verwendet. Die Testflächen, deren Geometrie in 4.1 genauer beschrieben ist, wurden dabei durch Auftrennen der Bodenschweißnaht ausgewechselt.

### 3.2 Kreislaufsystem

Der an das Versuchsgefäß angeschlossene Natriumkreislauf mit Naturumlauf ist für das geplante Versuchsprogramm aus zwei Gründen erforderlich:

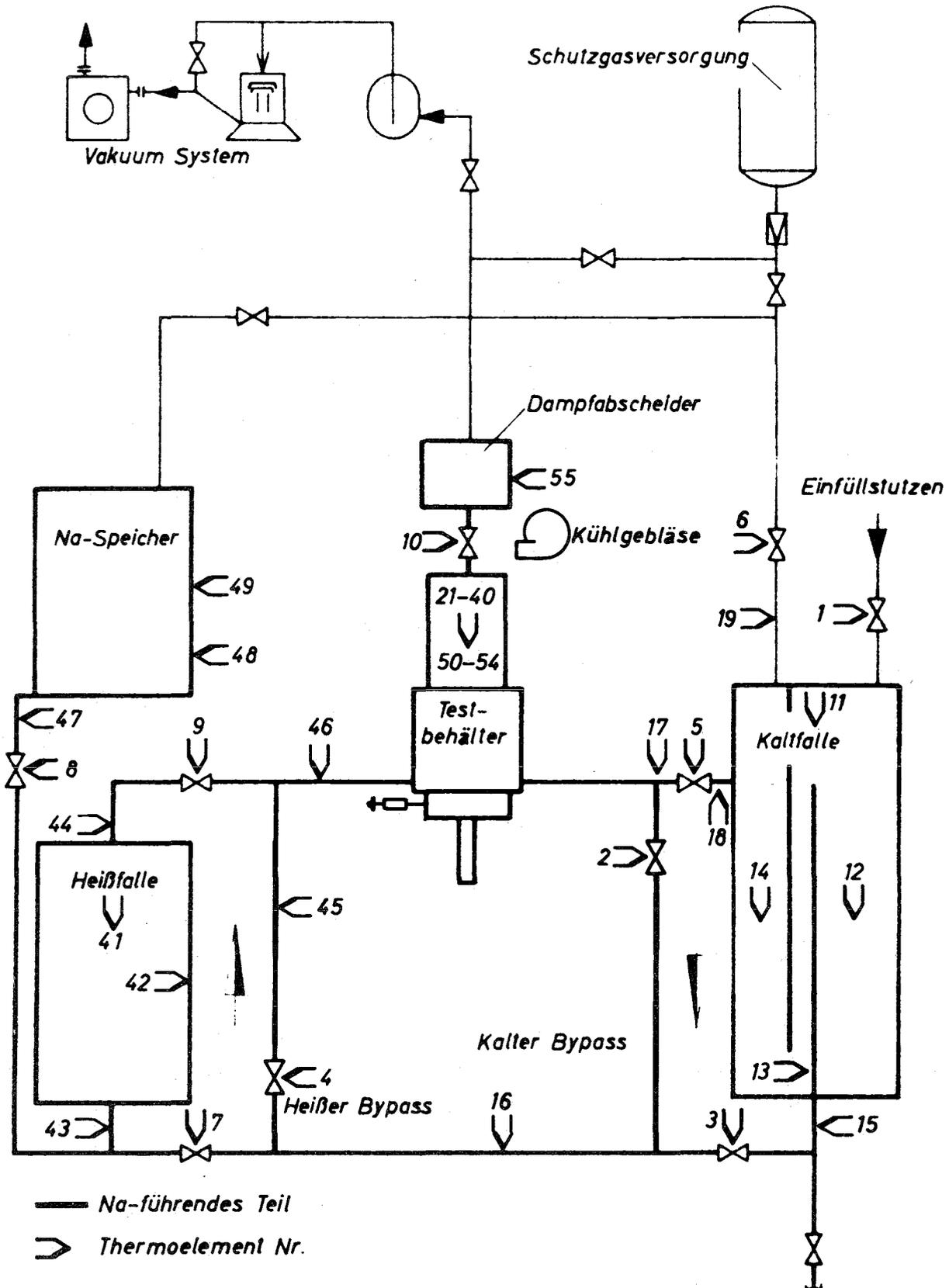
- a) Der Versuchsbehälter mit der Testfläche und das Rohrleitungssystem wird durch das umlaufende Natrium gereinigt. Dies ist jeweils nach dem Einbau eines Behälters bei Testflächenwechsel der Fall. Die Testflächenreinigung wird durch ein in den Reinigungsprozeß eingeschobenes "Auskochen" mit Natrium in ihrer Wirkung verstärkt.
- b) Das dann verunreinigte Natrium muß von diesen gelösten Verunreinigungen gereinigt werden. Insbesondere das Natriumoxid  $\text{Na}_2\text{O}$  muß durch geeignete Maßnahmen abgeschieden werden. Da die  $\text{Na}_2\text{O}$ -Konzentration aber einer der wichtigen Versuchsparameter ist, der variabel sein soll, darf diese Abscheidung nicht vollkommen irreversibel sein.

Aus dem Fließbild der Apparatur (Abb. 5) sind die für die geforderten Prozeduren vorgesehenen Komponenten und ihre Anordnung im Kreislauf zu ersehen. Ohne den Inhalt des Speichertankes enthält der natriumführende Teil des Systems ca. 7,5 Liter Natrium. Die Apparatur wurde aus den Werkstoffen

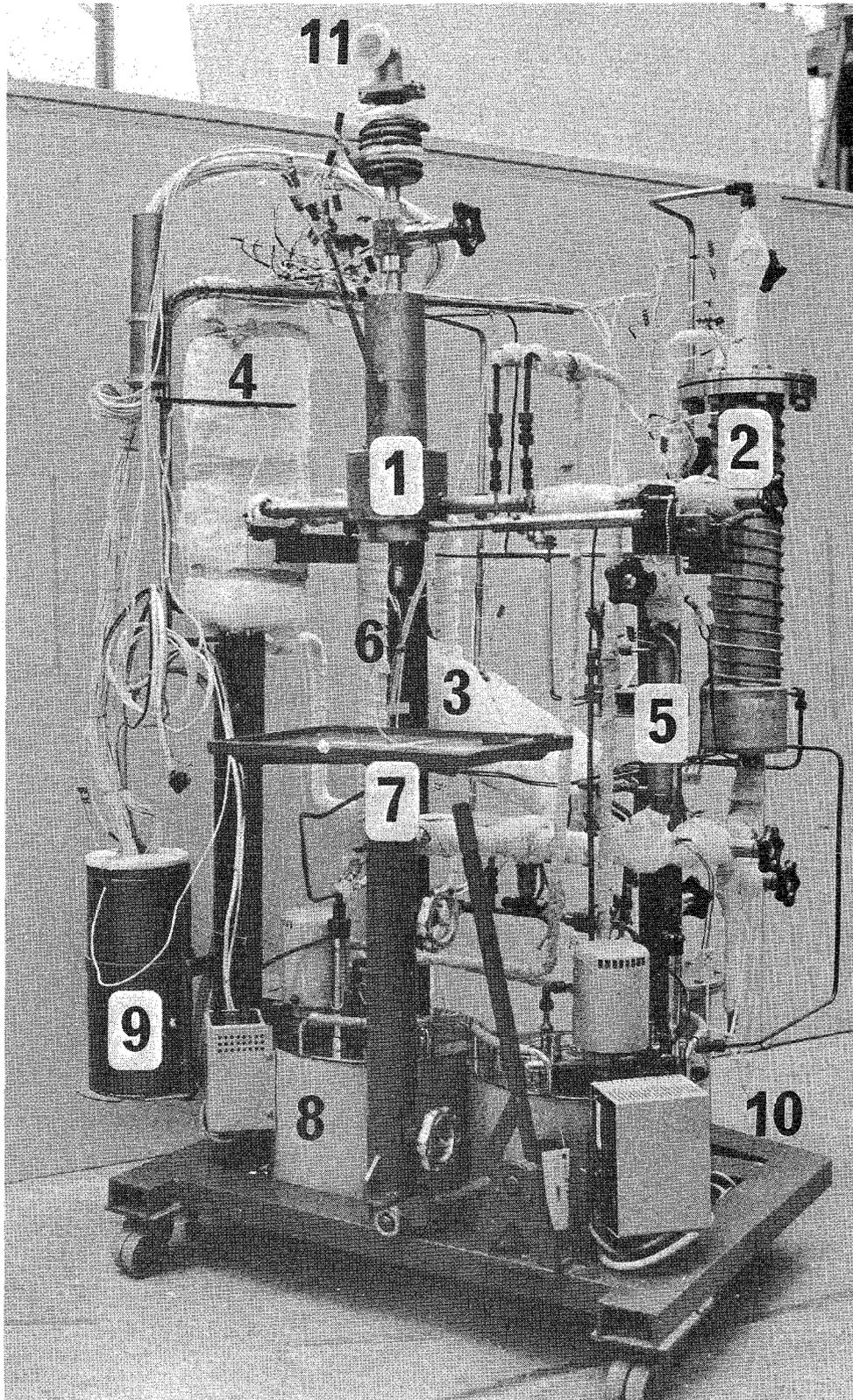
Nr. 4541	X 10 Cr Ni Ti 18 9 und
Nr. 4571	X 10 Cr Ni Mo Ti 18 10

als dichtverschweißte Konstruktion erstellt. Lösbare Verbindungen sind nur am Kaltfallendeckel und an den Anschlüssen zum Vakuum- und Schutzgassystem vorgesehen. Abb. 6 zeigt die fertiggestellte Apparatur bei entferntem Ofen. Das Rohrleitungssystem ist nur an zwei Punkten unterstützt und in mehrfach abgeknickter Weise ausgeführt, um der ungleichmäßigen Wärmeausdehnung zwischen heißem und kaltem Ast (für Naturumlauf) Rechnung zu tragen.

Der im regulären Betriebszustand nicht natriumführende Teil der Apparatur besteht aus der Schutzgasversorgung und dem Vakuumsystem (vgl. Abb. 5). Die Schutzgasversorgung erfolgt aus einer handelsüblichen



**Abb. 5** Fließbild der Apparatur mit Temperaturmeßstellen



**Abb. 6:** Versuchsstand zur Untersuchung des Siedeverzuges von Natrium

- |                 |   |
|-----------------|---|
| 1 Testbehälter  | 7 Ofenbühne, absenkbar                                |
| 2 Kaltfalle     | 8 Thermostat für Ölkühlung                            |
| 3 Heißfalle     | 9 Eis-Vergleichsstelle für Thermoelemente             |
| 4 Speichertank  | 10 Montagerahmen, fahrbar                             |
| 5 Kalter Bypass | 11 Schutzgaszuleitung und<br>Anschluß an Vakuumsystem |
| 6 Heißer Bypass |   |

Druckflasche mit "ARGON REINST"<sup>1)</sup> über ein Druckminderventil. Das Gas wird bis auf wenige Versuche nur zu Transportzwecken (Leeren oder Füllen des Kreislaufes aus dem Speicher) und zur Verhinderung des Siedens bei der Heißfallenreinigung mit Drücken bis zu 400 Torr benutzt. Daher wurde keine weitere spezielle Gasreinigung, z.B. eine NaK-Wäsche, eingebaut.

Zum Evakuieren der Anlage dient ein Säulenpumpstand Typ PD 30 L, Fabrikat Leybold-Heraeus. Aus Sicherheitsgründen wurde dieses von Kühlwasseranschlüssen unabhängige, luftgekühlte Aggregat gewählt. Der Pumpstand besteht aus einer zweistufigen Drehschiebervorpumpe Typ D 1 und im Hochvakuumteil aus einer luftgekühlten Öldiffusionspumpe Typ DO 30 L. Bei Bedarf kann eine mit flüssiger Luft betriebene Tieftemperatur-Kühlfalle zwischen Pumpstand und Natriumkreislauf geschaltet werden.

Alle Anschlüsse und Ventile, die Gasleitungen und Natriumkreislauf direkt trennen, sind stehend angeordnet, damit sie im Falle eines unbeabsichtigten Eindringens von Natrium durch Ausschmelzen wieder funktionsfähig gemacht werden können.

Die Komponenten des natriumenthaltenden Systembereiches sind im kalten Ast

Kaltfalle und  
kalter Bypass

im heißen Ast des Naturumlaufsystems

Heißfalle und  
heißer Bypass;

der Testbehälter (siehe 3.1) bildet das obere Verbindungsstück zwischen heißem und kaltem Bereich. Vor dem Eintritt in die Heißfalle ist der Speichertank am tiefstgelegenen Rohrleitungsteil des Kreislaufs angeschlossen. Dadurch kann das System, falls erforderlich, vollkommen entleert werden.

---

1) Verunreinigungen in vpm (Analysewerte):  $\sqrt{-28_7}$

H <sub>2</sub>	=	0,06	,	H <sub>2</sub> O	6,7
O <sub>2</sub>		2,7	,	CH <sub>4</sub> + CO <sub>2</sub>	0,06
N <sub>2</sub>		5,7	,	frei von weiteren Kohlenwasserstoffen	

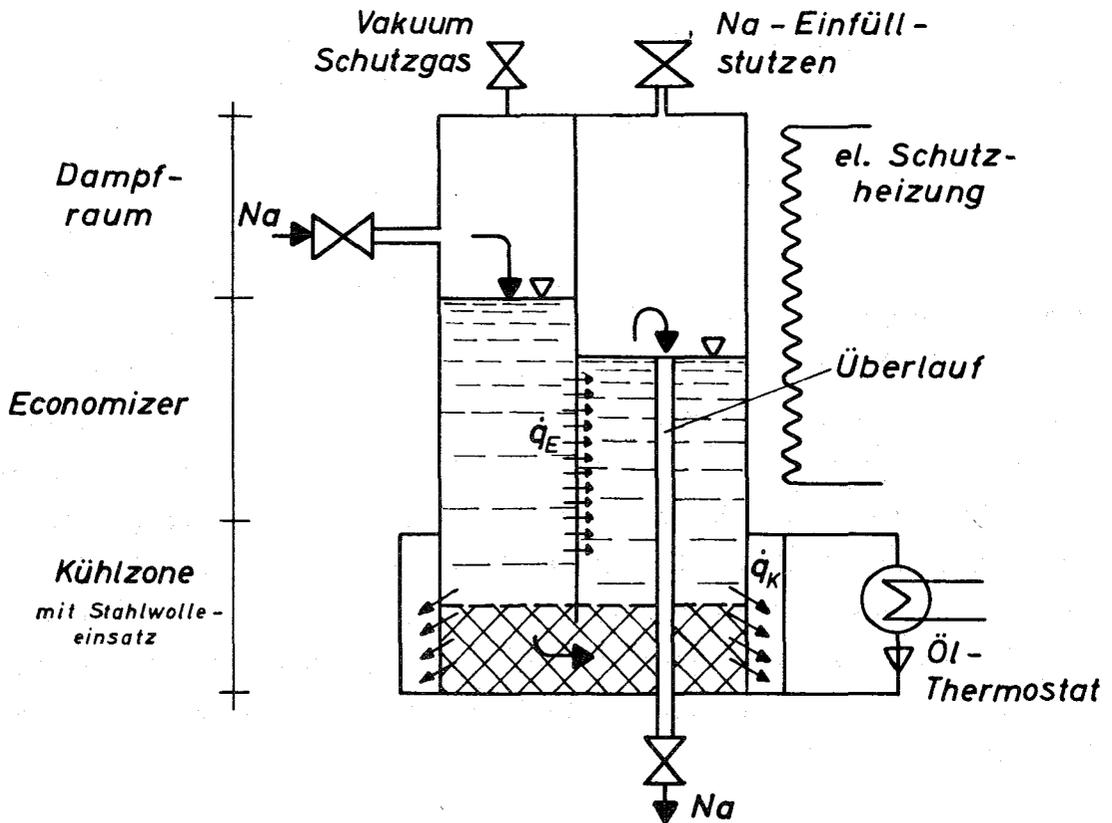


Abb. 7a: Kaltfalle (schematisch)

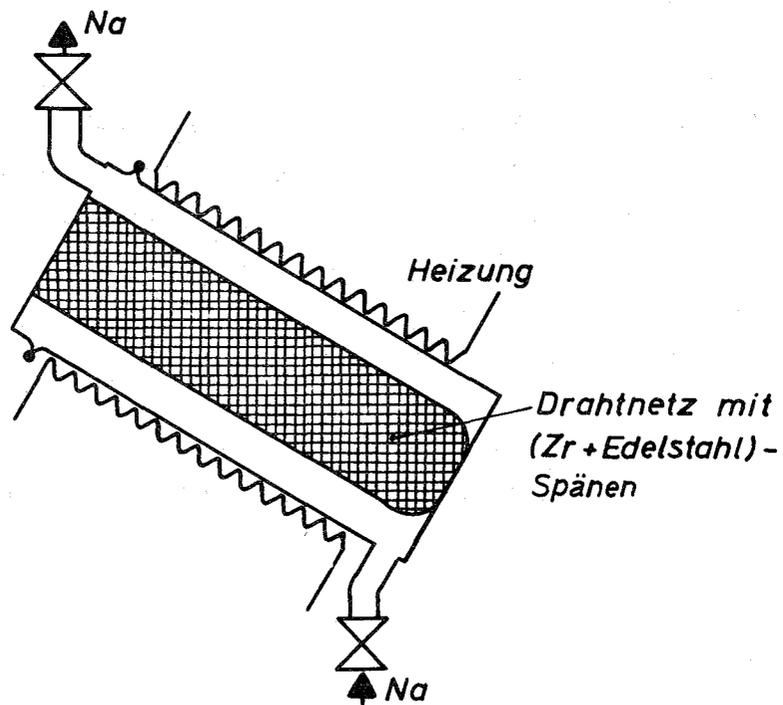


Abb. 7b: Heißfalle (schematisch)

Die Natriumreinigung beginnt aus ökonomischen Gründen immer mit der sogenannten "Kaltfalle". Dabei wird die Temperaturabhängigkeit der Löslichkeit der Verunreinigungen, besonders von  $\text{Na}_2\text{O}$ , ausgenutzt. Hier wird eine Durchflußkaltfalle (keine Diffusionskaltfalle) [32] benutzt. Schematisch ist sie in Abb. 7a dargestellt. Im gekühlten unteren Ende scheiden sich die dann in übersättigter Lösung vorliegenden unerwünschten Metalle und Oxide an den kalten Wänden und in einem eingebauten Stahlwollefilter durch Auskristallisation ab. Während des Reinigungsprozesses stellt sich im ganzen Kreislauf ein temperaturabhängiges Verteilungsgleichgewicht zwischen allen beteiligten Stoffen ein, was insbesondere für den Sauerstoffgehalt, der hier Parameter ist, von Wichtigkeit ist [35]. Das Niveau der Endkonzentrationen ist von der Kühlöltemperatur an der Kaltfalle abhängig und somit einstellbar. Da bei Temperaturerhöhung an der Kaltfalle ein Teil der abgeschiedenen Stoffe wieder in Lösung geht, erfüllt die Kaltfallenreinigung die geforderte Reversibilität.

Über eine Wärmebilanz am heißen Bypass wurde der Durchsatz bei normal ablaufender Kaltfallenreinigung zu ca. 9 ltr/h berechnet, das entspricht einer Strömungsgeschwindigkeit in der Kaltfalle von etwa 0,5 mm/s. Durch diese sehr langsame Strömung wird die Abscheidung der Verunreinigungen zusätzlich begünstigt, aber auch die Gefahr einer Verstopfung erhöht.

Eine über das Reinigungsvermögen der Kaltfalle (ca. 1 ppm  $\text{O}_2$ ) hinausgehende Verringerung der Verunreinigungskonzentration ist nur durch irreversible chemische Reaktionen möglich. Dazu dient die "Heißfalle", die bei Temperaturen um  $700^\circ\text{C}$  arbeitet. Da bei Temperaturen über  $400^\circ\text{C}$  im Natrium in größeren Mengen nur noch  $\text{Na}_2\text{O}$  und C als Verunreinigungen in Frage kommen [32], betrifft auch die Heißfallenreinigung hauptsächlich diese Substanzen.

Der Sauerstoff wird durch Reduktion des  $\text{Na}_2\text{O}$  mit sog. Gettermetallen gebunden, deren Oxide niedrigere Bildungsenergien haben als  $\text{Na}_2\text{O}$

(vgl. Abb. 38a u. b). Hier werden Zirkonspäne verwendet, die über die Reaktion



den Sauerstoff aus dem Natrium zurückhalten. So sind Oxidkonzentrationen von weit unter 1 ppm erreichbar. Der Kohlenstoff wird in der Heißfalle durch einen Aufkohlungsprozeß vorwiegend an Zirkon, aber auch an kohlenstoffarmen Edelstahlspänen und der Behälterwand gebunden.

Die Zirkonspäne sind mit Edelstahlspänen vermischt in einen Drahtnetzeinsatz in der Heißfalle enthalten. Der Einsatz wird in der in Abb. 7 b dargestellten Weise vom Natrium durchströmt. Für den Betrieb der Heißfalle hat es sich aufgrund der Volumenverhältnisse als sinnvoll erwiesen, ( $V_{\text{Heißfalle}} > V_{\text{Rest ohne Kaltfalle}}$ ) absatzweise vorzugehen. Der Heißfalleninhalt wird durch Naturumlauf ausgetauscht.

Ein gleichzeitiger Betrieb von Kaltfalle und Heißfalle ist nicht sinnvoll, da dann infolge des bestehenden Konzentrationsgradienten ständig Oxid von der Kaltfalle zur Heißfalle transportiert wird. Das Gettermaterial wird schnell verbraucht und für den eigentlichen Zweck unwirksam. Die Kaltfalle verliert ihr Verunreinigungsreservoir und damit die Möglichkeit des umkehrbaren Betriebes. Zur Vermeidung eines derartigen Betriebszustandes sind die beiden Bypassleitungen vorhanden. Die nicht benutzte Reinigungseinheit wird jeweils umgangen.

Alle natriumführenden Behälter und Leitungen sind bis zu den lösbaren Anschlüssen an das Vakuumsystem mit regelbaren elektrischen Begleitheizungen versehen, da der Schmelzpunkt von Natrium bei  $98^{\circ}\text{C}$  liegt. Die einzelnen Heizkreise sind so aufgeteilt, daß ein störungsfreies Aufschmelzen des Natriums in der kalten Anlage von den freien Oberflächen in Testbehälter, Kaltfalle und/oder Speichertank aus geschieht. Die Volumenausdehnung wird dabei ohne Druckaufbau in den flüssigen Bereich erfolgen. Da die Ventile erst bei Temperaturen ab ca.  $130^{\circ}\text{C}$  einwandfrei bedienbar sind, wird der Naturumlauf jeweils nur durch ein einziges Ventil unterbrochen. Ein Einschluß von Natrium in einem Rohrleitungsabschnitt und mögliche Folgeschäden werden so vermieden.

Zur Überwachung der Anlage sind zusätzlich zu den im Testbehälter installierten Thermoelementen weitere 30 Ni-CrNi-Mantelthermoelemente an strategischen Punkten des Kreislaufes angebracht (vgl. Abb. 5). Sie versorgen die Heizkreisregler und Registriergeräte mit Meßwerten und ermöglichen über Wärmebilanzen eine Durchflußkontrolle.

Die Isolation der Versuchsapparatur besteht überwiegend aus Mineralfasermatte. Für Teile der Rohrleitungen wurde Asbestbandgewebe verwendet. Die Fasermatte hat sich auch bei Natriumaustritt in geringer Menge durch Lecks zum Abdecken und Schadensverhütung durch Einfrieren bewährt. Da die verwendeten Isolierstoffe beide an Silizium gebundenen Sauerstoff enthalten, muß darauf geachtet werden, daß sie überwiegend auf Temperaturen unter  $450^{\circ}\text{C}$  gehalten werden [36]. Bei Kontakt mit Natrium bei noch höheren Temperaturen tritt sonst eine exotherme Reaktion und verstärkter Schaden ein.

### 3.3 Meß- und Regeleinrichtungen

In der beschriebenen Versuchseinrichtung fallen vor allem drei Meßgrößen an:

elektrische Leistung,  
Druck und  
Temperatur,

wenn man von den während des Experimentierbetriebes auftretenden Sonderfällen (z.B. ohmscher Widerstand, Isolationsgüte) absieht.

Die elektrische Leistung der Heizkreise, des Testbehälterofens und der Heizvorrichtung des "heißen Fingers" wird über Thyristoren oder Stelltransformatoren geregelt. Für den "heißen Finger" ist dem Transformator noch ein Gleichrichter (Graetzschaltung) mit Kondensator zur Verminderung der Restwelligkeit nachgeschaltet. Dadurch wird einerseits der verwendete einadrige Heizleiter (2 mm  $\varnothing$ ) nicht so hoch beansprucht, andererseits wird die Einstreuung einer Störwechselfrequenz in die Signale der Thermoelemente verringert.

Zur Verringerung des Überwachungsaufwandes wurden einige vielverwendete Heizkreise mit Zweipunkt-Reglern automatisiert. Dies hat sich besonders für die Konstanthaltung der Ofentemperatur bewährt. Die Istwerte der Regler werden von entsprechend angebrachten Thermoelementen geliefert.

Die Öltemperatur der Kühlkreisläufe wird von zwei Haake-Ultrathermostaten auf den eingestellten Werten gehalten.

Die statische Druckmessung im System erfolgt in drei unterschiedlichen Bereichen:

- Grobmessung in der Schutzgaszuleitung mit einem Röhrenfedermanometer (Meßbereich: -1 bis +4 kp/cm<sup>2</sup>)
- Grobvakuummessung mit einem Leybold Membranvakuummeter (Meßbereich: 0,1 bis 760 Torr) in der Hauptvakuumleitung zum Versuchsbehälter. Dieses Gerät dient auch zur groben Überwachung der Gasfreisetzung im Versuchsbehälter bei der Natriumentgasung
- Fein- und Hochvakuummessung mit einem Leybold-Combitron (Meßbereich: 10<sup>-5</sup> bis 1 Torr) zur Überwachung der Entgasung der Apparatur vor der Füllung und des Natriums selbst.

Zur Messung dynamischer Drücke, wie sie im Natrium des Testbehälters bei der Dampfblasenentstehung auftreten, wurde ein piezo-elektrischer Quarz-Druckmeßkopf verwendet. Da der Meßkopf (in Schweißflauschsausführung) nur bis zu Temperaturen von ca. 200°C zuverlässig arbeitet, wurde eine ölgekühlte Temperaturabbaustrecke für den Anschluß an den Versuchsbehälter entwickelt, die in Abb. 8 im Schnitt dargestellt ist.

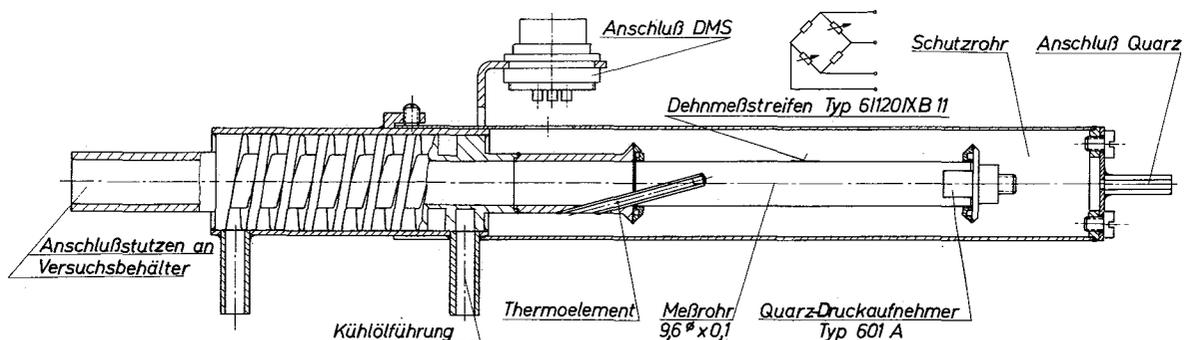


Abb. 8: Schnitt des ölgekühlten Piezoquarz-Druckmeßkopfes für den Einsatz in flüssigem Natrium

Der weitaus größte Teil der installierten Meßstellen dient zur Temperaturmessung und Überwachung (vgl. Abb. 5). Dazu werden Ni-CrNi Mantelthermoelemente von 1,0 mm und 0,5 mm Durchmesser verwendet. Alle Meßstellen sind in nichtisolierter TM-Ausführung gefertigt, wodurch ein schnelleres Ansprechen der Thermoelemente erreicht wird.

Abb. 9 zeigt vereinfacht das Schaltschema für die Meß- und Regeleinrichtungen. Die angegebenen Nummern der Thermoelemente entsprechen den in den Abbildungen 4b, 5 und 10 gezeigten Positionen.

Für den Kompensationsdrucker wurden von der Verteilerschiene aus drei Kombinationen für die Überwachung der am meisten gefahrenen Prozesse

Kaltfallenreinigung,  
Heißfallenreinigung und  
Versuchsbetrieb

fest verdrahtet. Durch einfaches Umstecken eines Vielpolsteckers wird der vorgesehene Prozess auf das Registriergerät geschaltet.

Sechs Meßkanäle für Temperatur aus dem Versuchsbehälter wurden mit Gleichspannungsquellen zur Nullpunktsunterdrückung versehen. Dadurch ist eine Aufspreizung der Restspannungen und eine genauere Auswertung des Ausgabestreifens des UV-Lichtstrahl-Oszillographen möglich. Letzteres gewinnt vor allem bei kleineren Temperaturdifferenzen und hohem Temperaturniveau an Bedeutung (s. 4.3, 4.4).

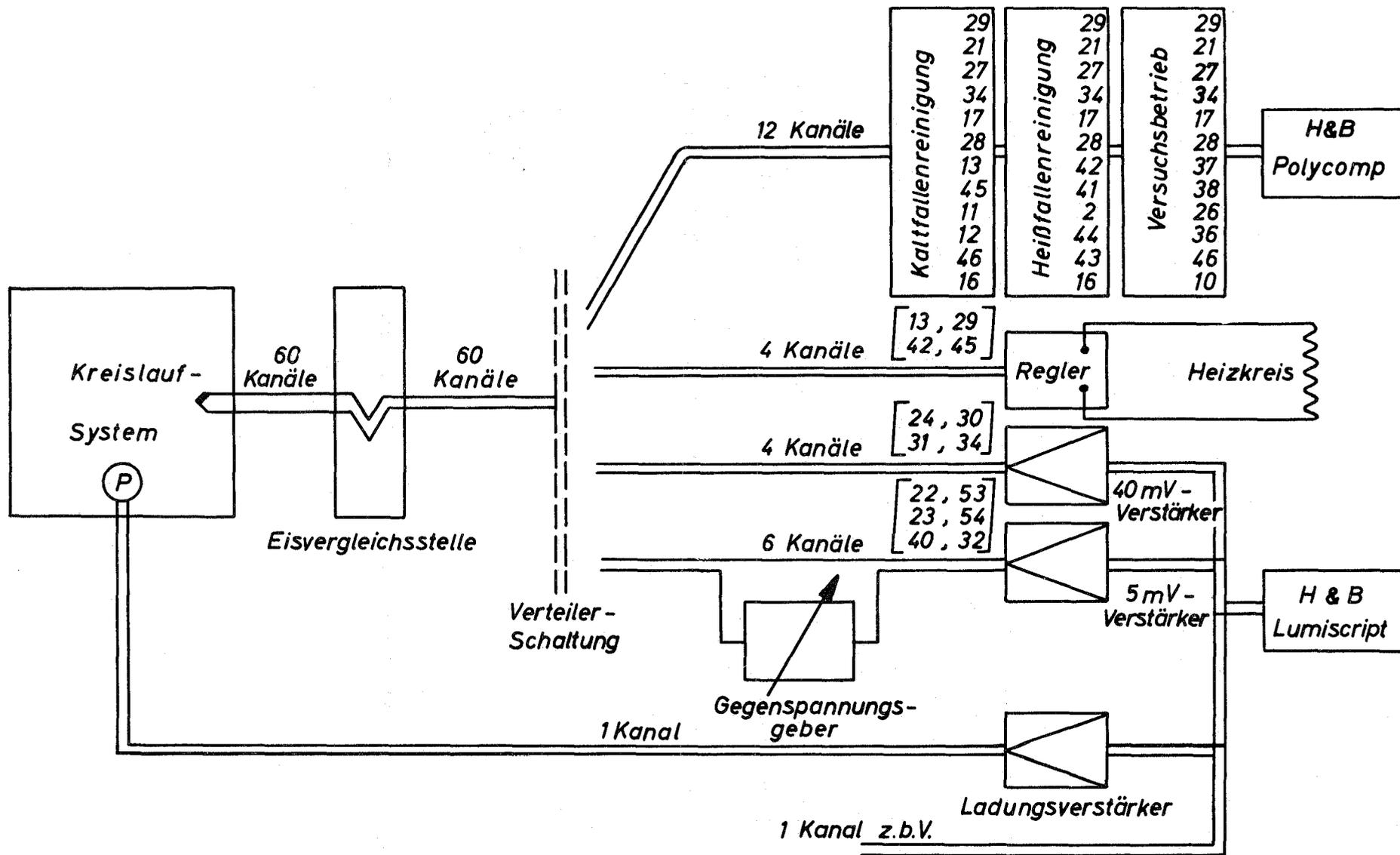


Abb. 9: Schaltschema der Meß- und Regeleinrichtungen (vgl. auch Abb. 5 und Abb. 10 )

## 4. Versuchsdurchführung

### 4.1 Übersicht

In diesem ersten Abschnitt soll zunächst die allgemeine Entwicklung des Versuchsprogrammes dargestellt werden. Auf den Ablauf der Einzelversuche und einige Besonderheiten des Versuchsprogrammes wird in 4.2 näher eingegangen.

Aufgrund der größeren Schwierigkeiten hinsichtlich einer Variation war die Geometrie der untersuchten Höhlung ein erster vorrangiger Gesichtspunkt bei der Parameterwahl und -folge. Im weiteren Verlauf der Versuche wurde das Testflächenmaterial zu einem der Bohrungsgeometrie gleichwertigen Parameter. Beide sind mit Veränderungen der Versuchsapparatur verbunden, die gegenüber einer Änderung der Verunreinigungskonzentration einen wesentlich höheren Aufwand erfordern.

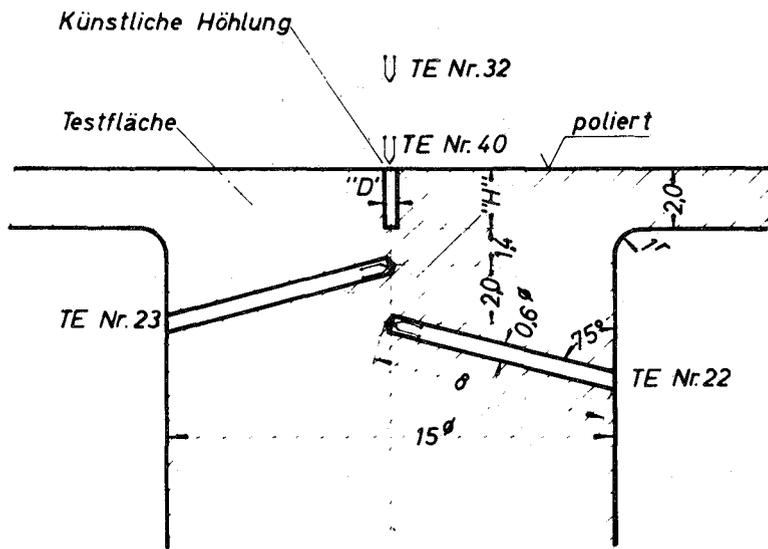
Als Ausgangspunkt der geometrischen Parameter wurde eine zylindrische Höhlungsform gewählt, die fertigungstechnisch keine Schwierigkeiten bereitet. Da sich das Programm dann mehr zur Materialuntersuchung und zu Veränderungen in der Oxidkonzentration entwickelte, wurde die einfache zylindrische Form der Höhlung beibehalten.

Alle Abmessungen und Materialien der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Testflächen sind in Tabelle 1 zusammengefaßt. Ergänzend dazu gibt Abb. 10 in einem Schnitt durch den Testbereich eine genauere Darstellung des Aufbaus. Die technische Ausführung der Testflächen für die verschiedenen Materialuntersuchungen gibt Abb. 11 wieder.

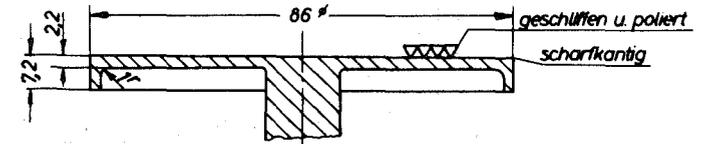
Das vollständige Versuchsprogramm soll hier nur kurz beschrieben werden. Es ist in Tabelle 2 zusammenfassend und mit allen durchgeführten Einzelschritten dargestellt. Die eingetragenen Daten geben einen Eindruck vom erforderlichen Zeitaufwand.

Testfläche - Nr.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
D [mm]	0,4	0,2	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0
H [mm]	2,0	1,0	0,8	0,8	0,4	0,8	0,8	0,16	0,8	0
H/D [1]	5	5	2	2	1	2	2	0,4	2	-
Werkstoff - Nr.	4541	4571	4571	Ni	4571	Fe	Cr (Leck!)	4571	Cr	4571

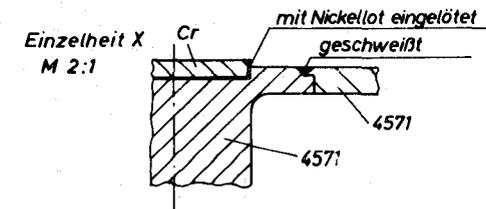
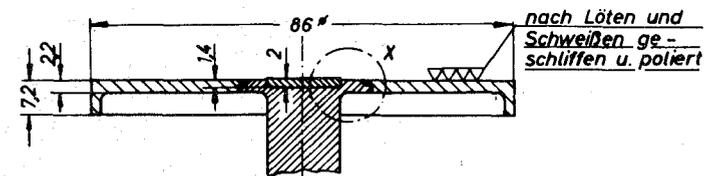
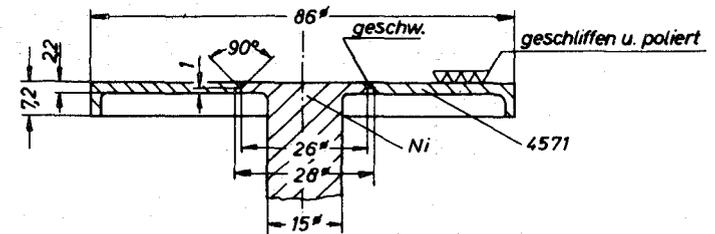
**Tabelle 1: Liste der untersuchten Testflächen**



**Abb. 10** Testbereich  
(Dimension für D und H vgl. Tabelle 1)



Werkstoff Nr. 4541; 4571; Fe



**Abb. 11** Ausführungsformen der Testflächen

Tabelle 2

Übersicht über den gesamten Versuchsbetrieb

Nr.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
W.Nr.	4541	4571	4571	N1	4571	Fe	Cr	4571	Cr	4571
D	0,4	0,2	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	00
H	2,0	1,0	0,8	0,8	0,4	0,8	0,8	0,16	0,8	00
25.3.68 Na-eingefüllt	K(150), (.7)	K(140), (.78)	K(115), (113)	K(116), (171)	K(115), (204)	K(117), (225)	K(120), (249)	K(113), (256)	K(123), (285)	K(135), (310)
	K(150), (.8)	K(127), (.79)	V(..5), (114)	K(117), (172)	H(700), (205)	H(700), (226)	H(700), (250)	H(700), (257)	H(700), (286)	H(700), (311)
Prozessfolge	K(125), (.10)	H(602), (.80)	(700, ---)	H(685), (173)	V(..8), (206)	V(..8), (227)	V(000), (251)	V(..6), (258)	V(..6), (287)	V(..12), (313)
	K(112), (.12)	V(..1), (.84)	H(700), (115)	V(.28), (174)	(700, ---)	(700, ---)	(000,000)	(700,856)	(700, ---)	(675,867)
	K(115), (.13)	(735, ---)	V(..5), (116)	(680,904)	H(700), (207)	H(700), (228)	H(700), (259)	H(700), (288)	H(700), (314)	
	H(630), (.14)	V(..10), (.85)	(700, ---)	K(108), (175)	V(..20), (208)	V(..9), (229)	V(..12), (260)	V(..6), (289)	V(..14), (315)	
	H(567), (.15)	(610,795)	V(..19), (117)	V(..8), (176)	(652,906)	(700, ---)	(689,832)	(700, ---)	(663,897)	
	V(..2), (.16)	V(..3), (.86)	(610,890)	(700, ---)	K(110), (209)	K(125), (230)		K(115), (261)	K(122), (290)	
	(850,880)	(649,701)	H(685), (118)	K(119), (177)	V(..8), (210)	V(..9), (231)		V(..3), (262)	V(..8), (291)	
	H(532), (.22)	H(602), (.87)	V(..2), (119)	V(..9), (178)	(700, ---)	(700, ---)		(700, ---)	(700, ---)	
	V(..5), (.24)	V(..7), (.88)	(600,620)	(700, ---)	K(119), (211)	K(147), (232)		K(125), (263)	K(126), (292)	
	(556,710)	(571,722)	V(..7), (121)	K(124), (179)	V(..8), (212)	V(..8), (233)		V(..12), (264)	V(..7), (293)	20.9.70
	V(..1), (.28)	V(..11), (.89)	(700,792)	V(..7), (180)	(700, ---)	(700, ---)		(700,805)	(700, ---)	
	(567,602)	(536,784)	K(114), (122)	(700, ---)	K(135), (213)	K(169), (234)		K(---), (265)	K(137), (294)	
	H(590), (.29)	V(..8), (.90)	V(..9), (123)	K(130), (181)	V(..7), (214)	V(..8), (235)		K(115), (269)	V(..7), (295)	
	H(485), (.30)	(668,869)	(612,712)	V(..8), (182)	(700, ---)	(700, ---)		V(..7), (270)	(700, ---)	
	V(..3), (.34)	K(127), (.91)	K(120), (124)	(700, ---)	K(170), (215)	K(130), (236)		(700,788)	K(155), (296)	
	(655,809)	V(..3), (.92)	V(..12), (125)	K(135), (183)	V(..8), (216)	V(..8), (237)		K(136), (271)	V(..8), (297)	
	H(496), (.35)	(607,718)	(609,708)	V(..8), (184)	(700, ---)	(700, ---)		V(..6), (272)	(700, ---)	
	V(..4), (.36)	V(..9), (.93)	K(125), (126)	(700, ---)	K(126), (217)	K(114), (238)		(700, ---)	K(179), (298)	
	(513,700)	(631,815)	V(..15), (127)	K(145), (185)	V(..8), (218)	V(..8), (239)		K(162), (272)	V(..6), (299)	
	V(..4), (.37)	V(..15), (.94)	(653,783)	V(..8), (186)	(700, ---)	(700, ---)		V(..6), (273)	(700, ---)	
	(617,713)	(578,835)	K(130), (128)	(700, ---)	K(100), (219)	K(106), (240)		(700, ---)	K(140), (299)	
	V(..1), (.38)	K(164), (.95)	V(..5), (129)	K(160), (187)	V(..8), (220)	V(..8), (241)		K(125), (274)	V(..5), (300)	
	(916, ---)	K(167), (.96)	(700, ---)	V(..8), (188)	(700, ---)	(700, ---)		V(..6), (275)	(700, ---)	
	H(697), (.39)	V(..13), (.97)	K(135), (130)	(700, ---)	K(121), (221)	K(120), (242)		(700, ---)	K(128), (300)	
	V(..3), (.40)	(615,812)	V(..5), (131)	K(184), (189)	V(..6), (222)	V(..8), (243)		K(108), (276)	V(..5), (301)	
	(615,754)	K(185), (.98)	(700, ---)	V(..8), (190)	(700, ---)	(700, ---)		V(..6), (277)	(700, ---)	
	V(..4), (.42)	V(..16), (.99)	K(140), (132)	(700, ---)		K(155), (244)		(700, ---)	K(110), (301)	
	(551,889)	(585,828)	V(..5), (133)	K(133), (191)		V(..8), (245)		K(183), (278)	V(..5), (302)	
	K(127), (.46)	K(185), (100)	(700, ---)	V(..8), (192)	19.1.70	(700, ---)		V(..6), (279)	(700, ---)	
	V(..4), (.47)	V(..9), (101)	K(145), (134)	(700, ---)				(700, ---)	K(104), (302)	
	(553,827)	(611,790)	V(..5), (135)	K(128), (193)				K(126), (280)	V(..7), (303)	
	V(..5), (.48)	V(..14), (102)	(700, ---)	V(..8), (194)		31.3.70		V(..6), (281)	(700, ---)	
	(671,829)	K(164), (103)	K(150), (136)	V(..8), (194)				(700, ---)	K(127), (304)	
	K(127), (.50)	V(..10), (104)	V(..5), (137)	(700, ---)					V(..11), (305)	
	V(..5), (.51)	(623,795)	(700, ---)	K(114), (195)				16.6.70	(700,760)	
	(610,796)	V(..11), (105)	K(155), (138)	V(..8), (196)						
	K(164), (.52)	(627,766)	V(..5), (139)	(700, ---)						
	V(..6), (.54)	K(127), (106)	(700, ---)	K(153), (197)					27.7.70	
	(555,795)	V(..12), (107)	K(165), (140)	V(..7), (198)						
	K(185), (.55)	(614,810)	V(..24), (141)	(700, ---)						
	V(..7), (.56)		(657,803)	K(100), (199)						
	(556,805)		K(175), (142)	V(..5), (200)						
	V(..3), (.57)	1.4.69	V(..5), (143)	(700, ---)						
	(613,801)		(700, ---)							
	K(160), (.59)		K(185), (144)							
	V(..5), (.60)		V(..25), (145)	30.10.69						
	(630,900)		(653,780)							
	V(..10), (.61)		K(132), (146)							
	(700,910)		V(..5), (147)							
	K(165), (.63)		(700, ---)							
	V(..12), (.64)		K(128), (148)							
	(553,827)		V(..5), (149)							
	V(..12), (.65)		(700, ---)							
	(556,785)		K(112), (150)							
	K(132), (.68)		V(..5), (151)							
	K(120), (.69)		(700, ---)							
	V(..9), (.70)		K(116), (152)							
	(570,825)		V(..5), (153)							
	V(..4), (.71)		(700, ---)							
	(690,710)		K(123), (154)							
	G (1)		V(..10), (155)							
	V(..7), (.73)		(700, ---)							
	(590,856)		K(109), (156)							
	G (2)		V(..10), (157)							
	V(..5), (.74)		(700, ---)							
	(595,841)		K(122), (158)							
	G (3)		V(..9), (159)							
	V(000), (000)		(700, ---)							
	(000,000)		K(131), (160)							
			V(..13), (161)							
			(700, ---)							
	14.10.68		K(111), (162)							
			V(..8), (163)							
			(700, ---)							
			K(126), (164)							
			V(..6), (165)							
			(700, ---)							
			K(114), (166)							
			V(..8), (167)							
			(700, ---)							
			K(107), (168)							
			V(..8), (169)							
			(700, ---)							
			29.9.69							

Erläuterung

- G (P) Versuche mit Gasdruck P kp/cm<sup>2</sup> zu  $\sqrt{17}$
- V (MMM), (NNN) Versuchserie Nr. NNN mit MMM Einzelversuchen (T1), (T2) im Sattedampfbereich zwischen T1 °C und T2 °C
- K (KFT), (NNN) Kaltfallenreinigung bei KFT °C, Schrieb Nr. NNN
- H (HFT), (NNN) Heißfallenreinigung bei HFT °C, Schrieb Nr. NNN
- K<sup>1</sup>) Zuleitung zum Pool undicht, Na-Austritt
- V<sup>+</sup> Teststrecke leck, unbrauchbar
- v<sup>1</sup>) nicht auswertbar
- Datum Abschluß der Versuche mit Testfläche

Um die Siedestabilität zu erhöhen [20,37], wurde in den ersten Testflächen mit der Untersuchung von Bohrungen begonnen, die im Verhältnis zu ihrem Durchmesser tief sind. Der Ausgangsdurchmesser von 0,4 mm war so gewählt, daß aufgrund der theoretischen Berechnungen (vgl. Kap. 2) im vorgesehenen Sättigungstemperaturbereich von 500° C bis etwa 850° C noch meßbarer Siedeverzug zu erwarten war.

Die Dimensionen und dabei zunächst der Durchmesser waren Hauptparameter der Versuchsreihen mit den Testflächen Nr. 1 und Nr. 2. Hinsichtlich des Verunreinigungsgrades, charakterisiert durch die Kaltfallentemperatur, wurden nur erste Übersichtsversuche gemacht, da hier jegliche Literaturhinweise fehlten. Diese grobe Übersicht mit nur drei Bereichen führte dann zu einer gezielten Versuchsfolge mit der 3. Testfläche. Damit wurden in 250 ausgewerteten Einzelversuchen genauere Ergebnisse über den Einfluß des Oxidgehaltes auf den Siedeverzug gewonnen.

Schon mit der 3. Testfläche und später mit Nr. 5 und Nr. 8 wurde der Einfluß der Tiefe der Höhlung untersucht (vgl. Tabelle 1). Werkstoff und Durchmesser (0,4 mm) blieben konstant. Diese Versuchsserie findet mit der Testfläche Nr. 10 ohne Höhlung ihren Abschluß.

Die Ergebnisse von Testfläche Nr. 3 führten zu der Entscheidung, ein spezielles Materialtestprogramm zu beginnen. Es wurden mit den Testflächen Nr. 4, 6, 7 und 9 die Hauptkomponenten des Werkstoffes Nr. 4571 - Ni, Fe und Cr - untersucht. Die Testfläche Nr. 7 fiel nach wenigen Reinigungsprozessen wegen einer Undichtheit aus und wurde durch die gleichartige Fläche Nr. 9 ersetzt.

Sowohl die Untersuchung zum Einfluß der Höhlungstiefe wie auch die Materialtests wurden mit heißfallenreinem Natrium begonnen und mit bestimmten Verunreinigungsgraden fortgesetzt, soweit es die Kaltfallentemperaturregelung zuließ. Durch diese Gleichartigkeit des Verfahrens wird die Möglichkeit stark reduziert, daß Versuchsserien aus prinzipiellen Gründen unvergleichbar werden.

Die Ergebnisse der in diesem Gesamtprogramm durchgeführten annähernd 1000 Einzelversuche sind in Kapitel 5 in vorwiegend graphischer Darstellung zusammengefaßt.

#### 4.2 Versuchsablauf

Wie aus dem vorangehenden Abschnitt und Tabelle 2 ersichtlich wurde, bilden der (oder die) Reinigungsprozess(e) und die nachfolgenden Versuche jeweils eine Einheit.

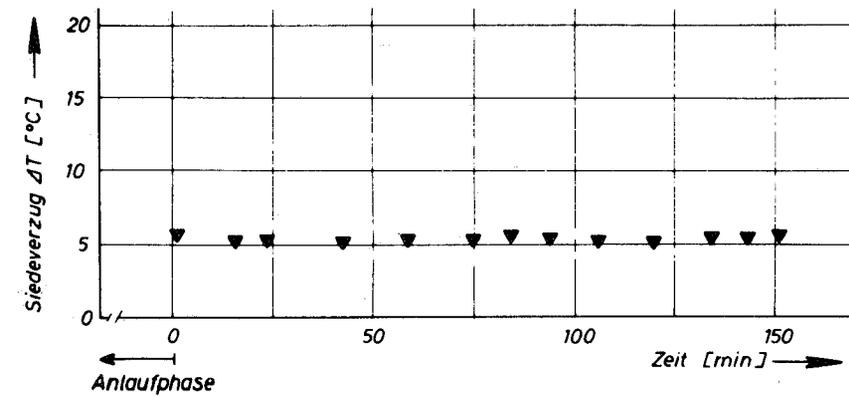
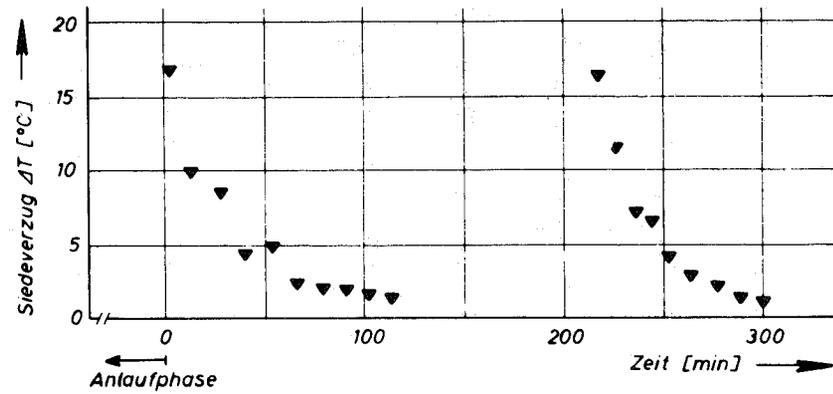
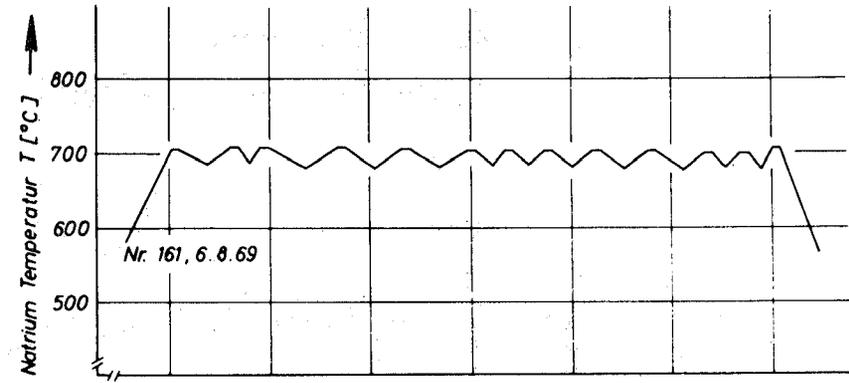
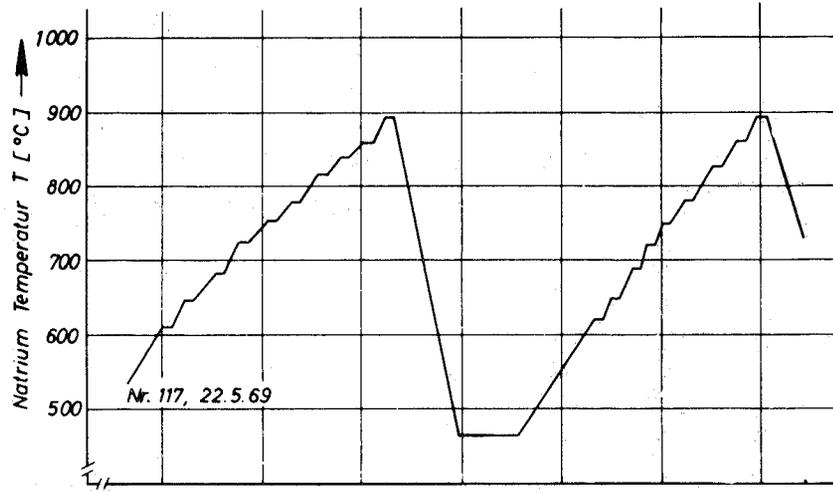
Hier soll jedoch nur auf den Ablauf der eigentlichen, später zur Auswertung gelangenden Versuchsfolgen eingegangen werden.

Zwei Haupttypen von Versuchsfolgen wurden ausgeführt (die schematisch an Beispielen in Abb. 12 gezeigt sind), wenn man von einigen wenigen Sonderuntersuchungen absieht. Der Unterschied zwischen den beiden Typen liegt in der Fragestellung:

Bei der ersten Art (Abb. 12a) wird nach der Abhängigkeit des Siedeverzuges vom Siedepunkt für einen bestimmten Systemzustand (Höhlungsgeometrie, Verunreinigung) gefragt. Die Reproduzierbarkeit wird in einer direkt folgenden Wiederholung, aber auch in einer zu einem späteren Zeitpunkt folgenden Serie geprüft. Diese Versuchsfolge wurde bei den ersten Übersichtsuntersuchungen und später jeweils für die Versuche nach den Heißfallenreinigungen angewandt.

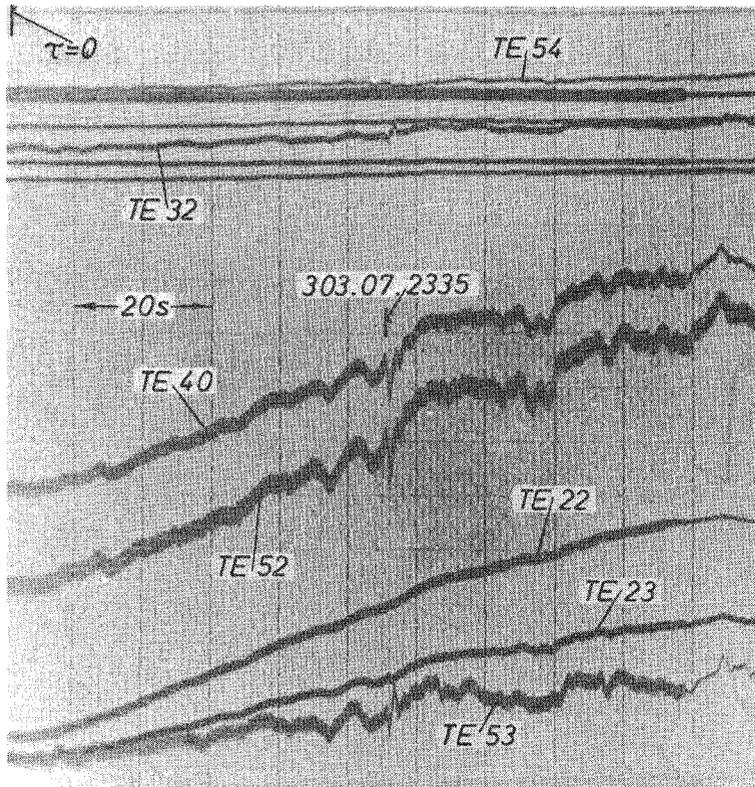
Zur Beantwortung der Frage nach der Abhängigkeit des Siedeverzuges vom Verunreinigungsgrad wurde der zweite Serientyp verwendet (Abb. 12b). Hierbei werden bei konstantem Siedepunkt mindestens fünf Versuche hintereinander gefahren. Um die Reproduzierbarkeit zu erhärten, sind besonders bei der Testfläche Nr. 3 auch mehrere komplette Serien wiederholt worden.

Zwischen den Einzelsiedeversuchen bei Typ 2 wurde der Versuchsbehälter etwas abgekühlt, um die Temperaturabsenkung am "Heißen Finger" unter den Siedepunkt zu beschleunigen. Durch diese Unterkühlung bei gleichzeitiger



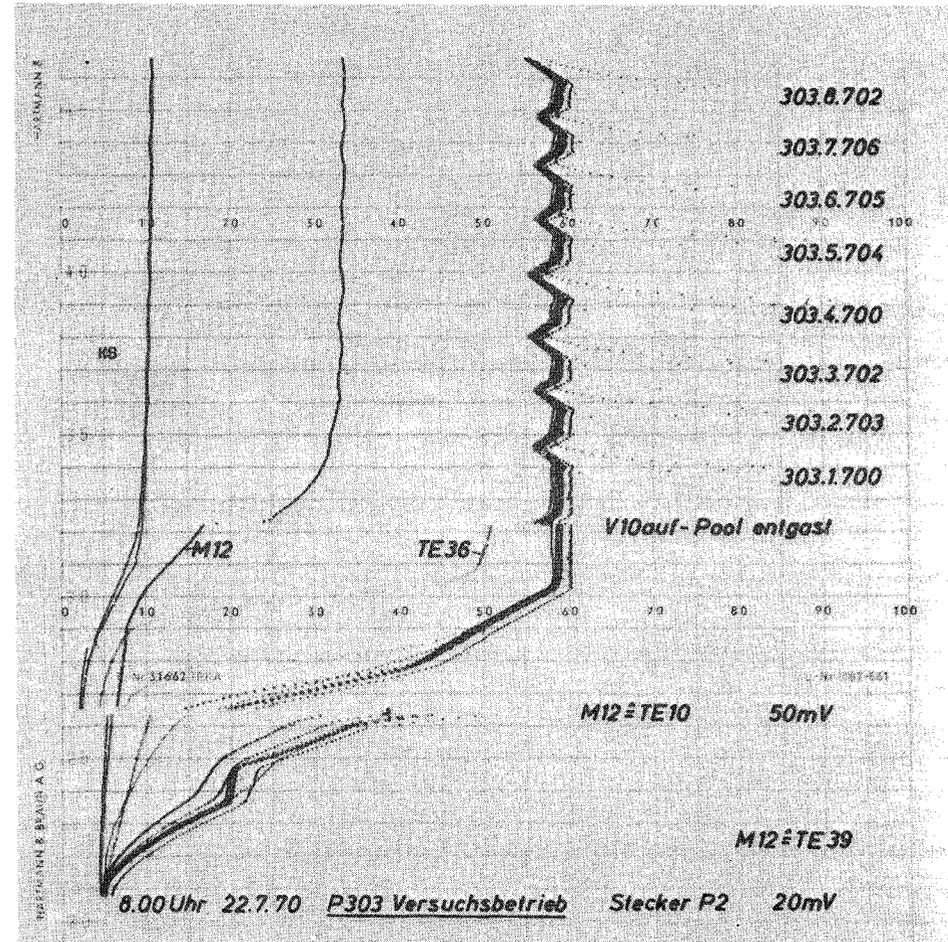
**Abb. 12a** Versuchsfolge bei variablen Siedepunkt  
(mit nachfolgender Wiederholung)

**Abb. 12b** Versuchsfolge bei konstantem Siedepunkt  
(mit mehrfacher Wiederholung)



**Abb.13a Einzelversuch**  
**Lumiscrypt-Ausgabe ( Beispiel )**

Testfläche9 (04-08-Cr, 22.7.70)  
 $T_{Sat} = 710,01^{\circ}C$   
 $\Delta T = 7,04^{\circ}C$



**Abb.13b Einzelversuch**  
**Polycomp-Ausgabe ( Beispiel )**

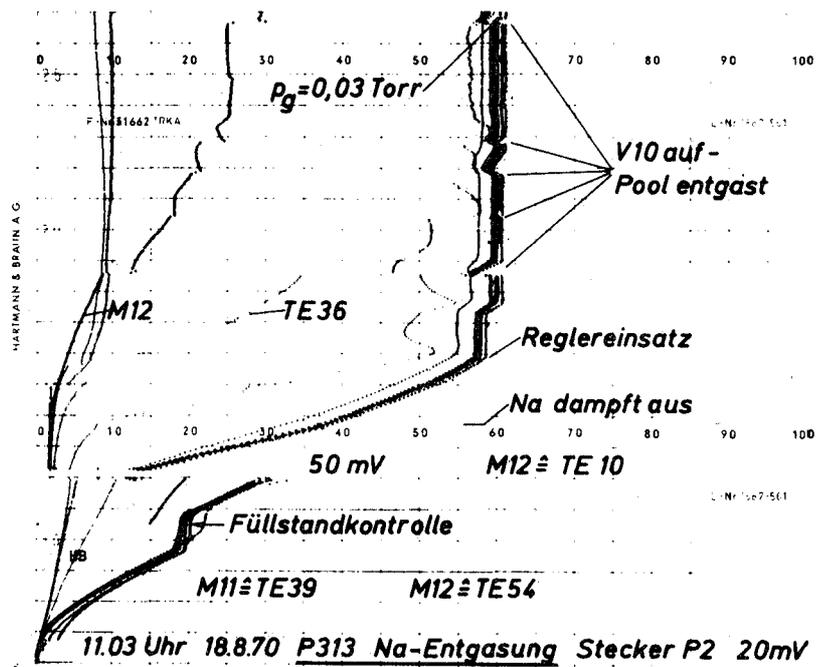
Umkehr des Wärmestromes wird die Kondensation eines möglicherweise existierenden Restdampfkeimes in der künstlichen Oberflächenrauigkeit erzwungen. Bei der in Abb. 12a gezeigten Versuchsfolge war die Zwischenkühlung des gesamten Behälters nicht erforderlich, lediglich der "Heiße Finger" wurde abgekühlt, um den Wärmestrom im Testbereich umzukehren. Die Unterkühlung und Restdampfkondensation wurde durch eine Druckerhöhung im Dampfraum (Kondensator) bewirkt.

Zu jedem Einzelversuch wurden Ausgabeschriebe der Registriergeräte erstellt. Beispiele zeigen Abb. 13a und 13b. Im Registrierstreifen des Polycomp ist der Anlaufvorgang bei Versuchsbeginn mit enthalten. Daraus wurde während der Schmelzphase der Füllstand ermittelt, der für die Bestimmung des statischen Druckes der Flüssigkeitssäule benötigt wird. Zur Auswertung der Lumiscryptstreifen wurde jeweils zu Beginn und am Ende einer Versuchsserie ein "Nullschrieb" angefertigt, um die Ausgangslage für die Thermospannungsmessung festzulegen und zu überprüfen.

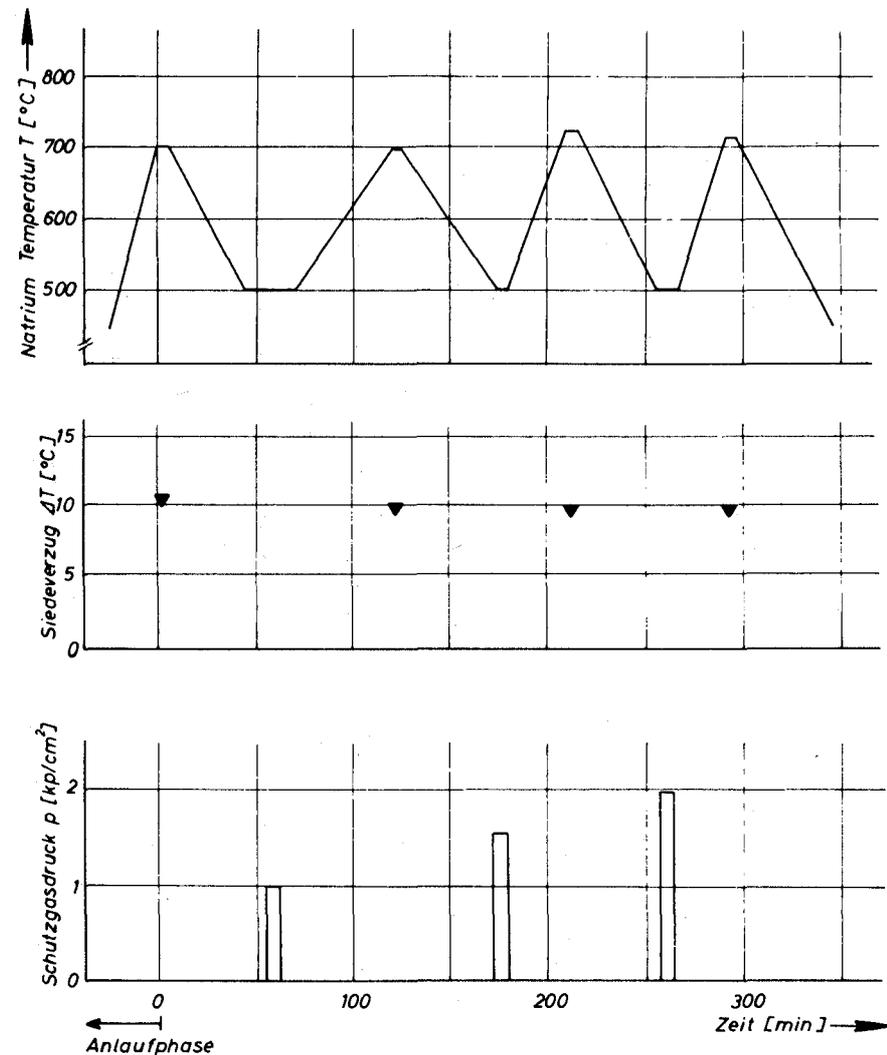
In diesem Zusammenhang ist auch die Kontrolle des Edelgasanteils in der Dampfatmosphäre des Kondensators über den Wärmedurchgang bzw. die Temperaturen am Kondensatorkopf zu erwähnen. Über die Thermolemente 35 und 36 (vgl. Abb. 4b) konnte der durch geringe Mengen Edelgases schon stark beeinflusste Wärmeübergang [38] detektiert werden. Abb. 14 zeigt ein Beispiel für den Temperaturverlauf bei einem Entgasungsvorgang. Die Empfindlichkeit des Verfahrens kommt in den angegebenen Werten deutlich zum Ausdruck.

In zwei besonderen Versuchsreihen wurden die Einflüsse von Gasdruck vor dem Versuch und der Gaslöslichkeit auf den Siedeverzug untersucht:

Zur groben Überprüfung der Holtz-Singer-Theorie [17, 39] des Einflusses der Temperatur-Druck-Vorgeschichte eines Systems auf den Siedeverzug beim ersten Aufsieden wurde eine spezielle Versuchsserie gefahren [40]. Bei konstanter Sättigungstemperatur (700°C) wurde mit Testfläche Nr. 1 der Siedeverzug gemessen. Zwischen den Einzelversuchen wurde jeweils für



**Abb.14** Kontrolle des Edelgasgehaltes  
 über den Wärmedurchgang im  
 Kondensatorkopfteil



**Abb.15** Einfluß der Temperatur-Druck-Vorgeschichte (Test)  
 Versuchsablauf

einige Minuten bei einer Natriumtemperatur von  $500^{\circ}\text{C}$  mit Schutzgas abgedrückt. Der Gasdruck wurde stufenweise erhöht (vgl. Abb. 15).

Der Einfluß gelösten Argons auf die Höhe des Siedeverzuges wurde in zwei Versuchsserien ebenfalls mit Testfläche Nr. 1 untersucht (vgl. Tabelle 2). Dazu wurde das Natrium in geringstmöglicher Menge über die beiden Bypassleitungen durch den Testbehälter in Naturumlauf gebracht (vgl. Abb. 5) und jeweils 10 Stunden lang bei  $400^{\circ}\text{C}$  mit Schutzgas beaufschlagt. Nach Untersuchungen von Thormeier [28] war dann weitgehende Sättigung erreicht. Der Schutzgasdruck betrug  $1\text{ kp/cm}^2$  und  $2\text{ kp/cm}^2$ . Eine Serie mit  $3\text{ kp/cm}^2$  mußte wegen eines Lecks während des Lösungszeitraumes abgebrochen werden. Jeweils anschließend an die Lösungszeit wurden Siedeversuche bei Sättigungspunkten zwischen  $570^{\circ}\text{C}$  und  $856^{\circ}\text{C}$  gefahren. Die Ergebnisse wurden mit Versuchen ohne gelöstes Argon verglichen [41]. Die Versuche wurden nach diesen wenigen Serien eingestellt (vgl. 5.3).

#### 4.3 Versuchsauswertung

Die Auswertung der Versuche wird ausgehend von den Registrierstreifen der Meßgeräte und den Protokolldaten in drei Hauptschritten vorgenommen:

- 1) Ausmessen der Nullschriebe des Lumiscrpts von Hand - Festlegung des Ereignisses: "1. Dampfblase am künstlichen Keim" - Ausmessen der zum Ereignis gehörenden, erforderlichen Meßdaten von Hand.
- 2) Zusammenstellen und Aufbereiten aller Protokoll- und Meßdaten einer Versuchsserie für die automatische Weiterverarbeitung mit einem Rechenprogramm in einer IBM 360/65 Anlage.
- 3) Interpretation der Ergebnisse und Festlegung neuer Versuchsschritte (falls erforderlich) - Weiterverwertung der auf Band gespeicherten Ergebnisse, Datenreduzierung durch Mittelwertbildung - graphische Darstellung der Versuchsergebnisse.

Die einzelnen Bereiche werden im folgenden näher erläutert. Die Rechenprogramme mit Beschreibung der verwendeten Bezeichnungen und der Ausführungsform der Eingabedaten sind im Anhang aufgelistet. Um den Vergleich zu erleichtern, werden hier die gleichen Bezeichnungen verwendet.

Der zeitliche Nullpunkt wird auf den Registrierstreifen durch das Ansprechen des Thermoelementes Nr. 21 am "Heißen Finger" und eine Markierung von Hand beim Einschalten der Heizung bereits bei den Versuchen selbst festgelegt (vgl. Abb. 13 a) u. b), Markierung  $\tau = 0$ ). Die Nullstellen der Temperaturmessung werden nach einer Versuchsserie aus den Nullschrieben ausgemessen und in ein gesondertes Protokoll eingetragen. Die Konstanz dieser Nullwerte auch über größere Zeitbereiche (Tage) konnte als sehr gut festgestellt werden.

Der Entstehungszeitpunkt einer ersten Blase an der künstlichen Höhlung - das Ereignis - wird, wie aus dem Temperaturverlauf in Abb. 13 a) deutlich wird, am empfindlichsten über die zeitlich koordinierten Signale der Thermoelemente Nr. 23 und Nr. 40 (Pos. vgl. Abb. 10) erkennbar. Entstehen Blasen z.B. an der Behälteraußenwand beim Reinigungsprozeß, so ist dies an der zeitlichen Folge des Ansprechens der achsennahen Thermoelemente klar unterscheidbar. Das Vorhandensein von weiteren natürlichen Keimstellen an der Oberfläche des heißen Fingers wurde jeweils nach Ausbau der Testfläche geprüft. Es wurden keine Siedekeime festgestellt, wie sie in Abschnitt 5.4 beschrieben sind.

Aus den Meßdaten für den Ereigniszeitpunkt jedes Einzelversuches wird mit dem Rechenprogramm NASIEVER<sup>1)</sup> der Siedeverzug ermittelt. Dies ist die Temperaturdifferenz  $\Delta T$  zwischen der Höhlungsbodentemperatur  $T_B$  ( $\equiv T_w$ ) und der zu diesem Ort gehörenden Sättigungstemperatur des Natriums  $T_S$  ( $\equiv T_{sat}$ )

$$\Delta T = T_B - T_S \quad (10)$$

---

1) Abkürzung für: Natrium SIEdeVERzug

Dazu sind folgende Einzelwerte zu ermitteln:

- die Temperaturen der Thermoelemente Nr. 22 und Nr. 23 zur linearen Extrapolation auf  $T_w$  (vgl. Abb. 16) während des langsamen Aufheißvorgangs kurz vor dem ersten Sieden. Für die Chromtestflächen wurde zur Berücksichtigung der unterschiedlichen Wärmeleitfähigkeit eine äquivalente Wandstärke für Werkstoff Nr. 4571 errechnet. Diese ist bei  $700^\circ\text{C}$  um den Faktor 2,7 dicker als die für Chrom gemessene [42]
- die Temperatur, bei welcher der isotherme Verdampfungs- und Kondensationsprozeß über der Natriumoberfläche stattfindet (TE Nr. 27 oder Nr. 34) zur Dampfdruckbestimmung
- der Füllstand, der den statischen Flüssigkeitsdruck repräsentiert.

Die Siedetemperatur im Höhlungsbereich wird aus dem Gesamtdruck errechnet.

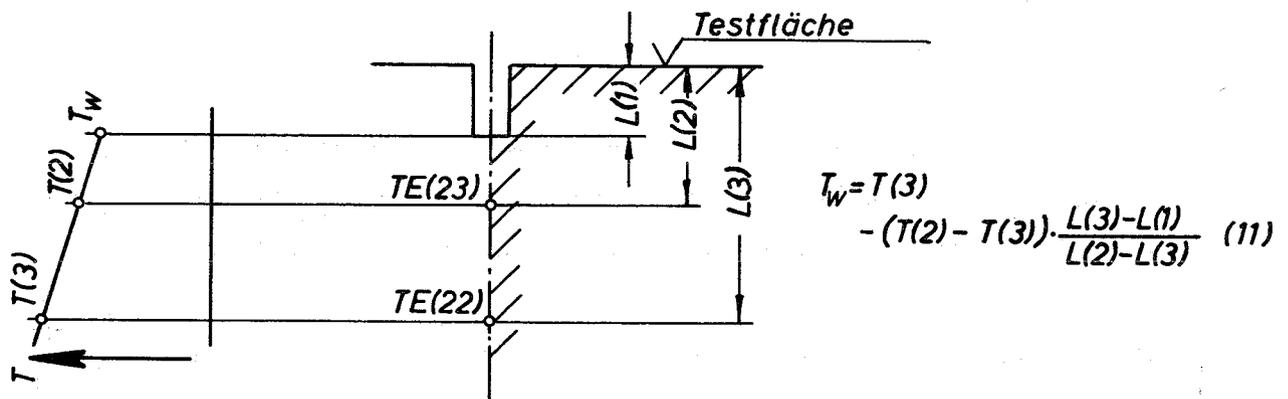


Abb. 16: Extrapolation der Höhlungsbodentemperatur

Die eigentlichen Meßwerte  $Y(I)$  liegen bis zur Verarbeitung im Rechenprogramm als den Thermospannungen analoge Längen vor. Diese werden unter Bezug auf die Nullwerte  $X(I)$  [mm] mit Maßstabfaktoren  $MS(I)$  [mV/mm] in Spannungen umgerechnet (vgl. dazu Abb. 17).

Mit einer FORTRAN IV-Funktion  $TNICRO$  [ $^\circ\text{C}/\text{mV}$ ] unter Beachtung der Nullpunktunterdrückung  $U(I)$  [mV] werden die Spannungen einheitlich in Temperaturen umgewandelt.

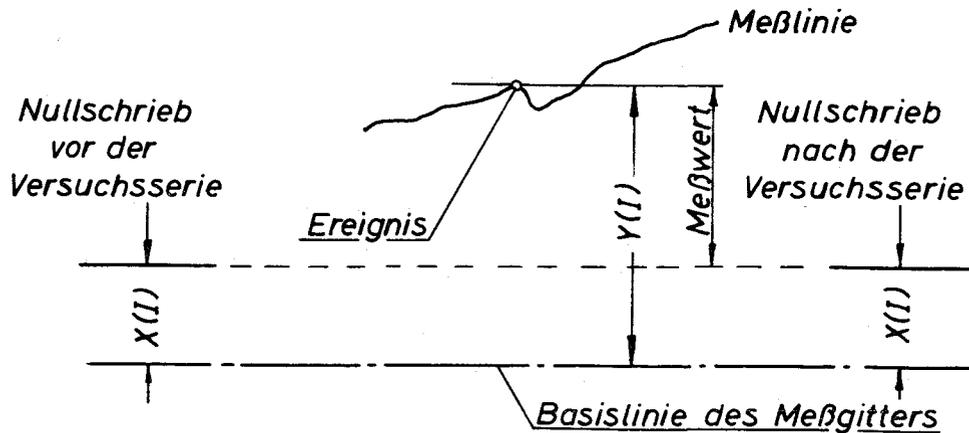


Abb. 17: Auswertungsschema (Lumiscrpta Ausgabe)

Für die Siedetemperatur wird praktisch der statische Flüssigkeitsdruck PF mit Hilfe der Unterfunktion PVAPNA [12] in Form eines Temperaturzuschlags der isothermen Verdampfungstemperatur aufgeschlagen.

Bei den wenigen Fällen, in denen ein Schutzgasvordruck PGO [Torr] bei der Temperatur TOK [°K] in den Testbehälter gegeben wurde, wurde dieser in gleicher Weise wie PF behandelt. Dazu ist lediglich eine Umrechnung vom Einfüllzustand PGO auf den Versuchszustand PG [Torr] bei der Temperatur TDK [°K] mit dem idealen Gasgesetz erforderlich.

Als Ergebnisse dieser Meßwertverarbeitung wurden

Siedetemperatur

Siedeverzug und eine

Kennzahl

in einer Feldanordnung EXPERG (EXperimentelle ERgebnisse) auf ein Magnetband (DV 0097) gespeichert. Von dort ist eine Weiterverarbeitung der Daten möglich. Die Kennzahl erlaubt die genaue Positionierung im Protokoll des gesamten Versuchsprogrammes.

Zur Erleichterung der weiteren Bewertung der Versuchsergebnisse wurde ein PLØT-PROGRAMM NAPLØTPR erstellt, das in einem halblogarithmischen Diagramm (Siedeverzug über der Siedetemperatur) eine Kurvenschar mit variablem kritischen Keimradius als Parameter liefert. Die Kurven für die kritischen Keimradien wurden wie in [44, 45] aus der Gleichgewichtsbedingung zwischen Drücken und Oberflächenspannung für den Fall vollständiger Benetzung ( $\cos \theta = 1$ ) errechnet (vgl. Gl. (9)).

Insbesondere für die Versuche, in welchen der Einfluß des Oxidgehaltes und des Testflächenmaterials auf den Siedeverzug ermittelt wurde, war es notwendig, die zahlreichen Versuchsergebnisse sinnvoll zu reduzieren, um klare grafische Darstellungen und eindeutige Aussagen zu ermöglichen. Dazu dient ein weiteres Programm (NAVERMES)<sup>1)</sup>, das mit den auf Band gespeicherten Ergebnissen arbeitet.

Als einheitlich verwertbare Vergleichsgröße, die sowohl den Siedeverzug als auch den Siedepunkt repräsentiert, wird in diesem Programm für jeden Fall (I) ein kritischer Keimradius

$$RZ(I) = r_{\text{krit}} (T_{\text{sat}}(I), \Delta T(I)) \quad (12)$$

nach Gl. (9) berechnet.

Über diese Bezugsgröße ist eine Umrechnung auf andere Sättigungstemperaturen möglich, da nachgewiesen wurde, daß die experimentellen Ergebnisse

---

1) NAtrium-VERarbeitung der MESSergebnisse

dem Verlauf der Kurven  $r_{krit} = \text{konst.}$  folgen. Diese Umrechnung wurde insbesondere bei der Auswertung der Untersuchung des Material- und Oxideinflusses verwandt, wo als Vergleichstemperatur  $T_{sat} = 700^{\circ}\text{C}$  gewählt wurde.

Wie alle experimentellen Ergebnisse sind auch hier die Meßgrößen mit Fehlern behaftet und unterliegen einem bestimmten Verteilungsgesetz. Wenn man davon ausgeht, daß alle Ergebnisse einer Versuchsserie mit dem gleichen Genauigkeitsgrad gewonnen wurden, können sie unter der Annahme einer Normalverteilung nach den Verfahren der Fehlerrechnung [43] weiterbearbeitet werden. Diese Annahme gilt für alle Serien, die in einem engen Sättigungstemperaturbereich (um  $700^{\circ}\text{C}$ ) durchgeführt wurden.

Der wahrscheinlichste Wert RQ für den kritischen Keimradius aus SNP gleichartigen Versuchen wird dann das arithmetische Mittel

$$RQ = \frac{\sum_{I=1}^{SNP} RZ(I)}{SNP} \quad (13)$$

Die Abweichung jedes Versuchswertes vom arithmetischen Mittel ist

$$EPSR(I) = RQ - RZ(I) \quad (14)$$

womit der einfache mittlere Fehler zu

$$ETAR = \frac{\sum_{I=1}^{SNP} EPSR(I)}{\sqrt{SNP(SNP - 1)}} \quad (15)$$

berechnet wird. Die Streuung ergibt sich entweder über die Abweichungen  $EPSR(I)$  zu

$$SIGR = \sqrt{\frac{\sum_{I=1}^{SNP} (EPSR(I))^2}{(SNP - 1)}} \quad (16)$$

oder über den einfachen mittleren Fehler ETAR zu

$$\text{SIGE} = \text{ETAR} \cdot \sqrt{\frac{\pi}{2}} \quad (17)$$

Weichen diese beiden Streuungswerte erheblich voneinander ab, so zeigt dies, daß in der betroffenen Versuchsserie keine Normalverteilung vorliegt, d.h. diese Berechnung nicht anwendbar ist. Der Unterschied betrug bei ca. 90 Serien im Mittel 8 % bezogen auf SIGR.

Für den arithmetischen Mittelwert RQ wird der zu allen weiteren Vergleichen benutzte Siedeverzug bei  $T_{\text{sat}} = 700^\circ\text{C}$  mit dem Unterprogramm MITTEL bestimmt. Ebenfalls von diesem Unterprogramm kann der 95 %-Vertrauensbereich für diesen Siedeverzug geliefert werden, wobei wieder eine Normalverteilung angenommen wird.

Unter Vernachlässigung weiterer Einflüsse des Oxidgehaltes auf z.B. die Oberflächenspannung  $\sigma$  von Natrium ergibt sich mit den errechneten mittleren kritischen Keimradien RQ die Möglichkeit, den Einfluß der Verunreinigungen auf die Benetzung zu errechnen. Die geometrischen Verhältnisse in einer zylindrischen Bohrung mit einer Dampf/Flüssigkeits-Grenzfläche, die dieser Betrachtung zugrunde liegen, zeigt Abb. 18.

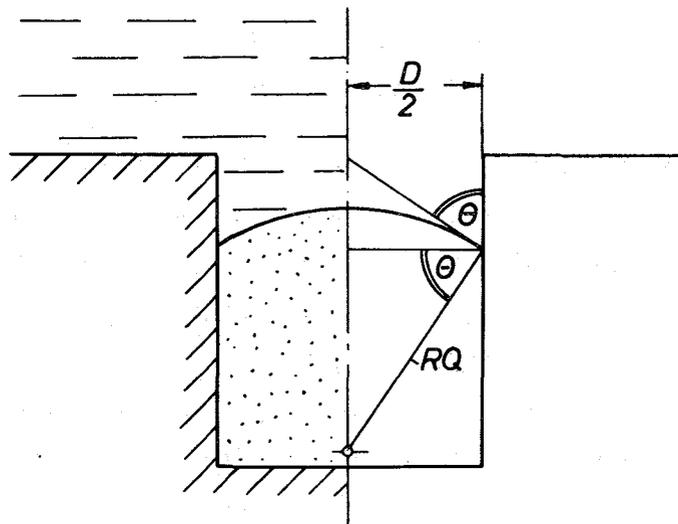


Abb. 18: Geometrische Verhältnisse an einer Dampfblase in zylindrischen Höhlungen (makroskopisch und idealisiert)

Der Benetzungswinkel  $\theta$  ergibt sich dann aus der Beziehung

$$\cos \theta = \frac{D}{2 \cdot RQ} \quad (18)$$

Das Verhältnis zwischen Bohrungsdurchmesser  $D$  und mittlerem kritischen Keimdurchmesser ( $2 \cdot RQ$ ) wird im Programm generell als "QUOTE" bezeichnet. Die Interpretation als Benetzungsverhältnis  $\cos \theta$  ist allerdings nur sinnvoll für  $RQ \geq D/2$ , da nur dann eine dreiphasige Berührungslinie möglich ist (vgl. Abb. 2).

Mit dem Datenmaterial, das von den Rechenprogrammen geliefert wird, werden die in Kap. 5 zusammenfassend erläuterten Ergebnisgraphiken erstellt.

Die Testflächen werden nach den Versuchen ausgebaut und metallographischer und chemisch-analytischer Untersuchung unterzogen, deren Ergebnisse ebenfalls in Kap. 5 enthalten sind.

#### 4.4 Fehlerabschätzung

Die in diesem experimentellen Programm auftretenden physikalischen Meßgrößen

Druck, Temperatur  
Gleichspannung und  
geometrische Abmessungen

sind mit gewissen Ungenauigkeiten behaftet. Diese haben ihre Ursache in der beschränkten Meßgenauigkeit der verwendeten Geräte und Verstärker, wodurch systematische Meßfehler bedingt sind. Dazu kommen die persönlichen Unsicherheiten des Beobachters bei der Auswertung (mangelhafte Interpolationsfähigkeit des Auges, Paralaxefehler u.a.), die zu subjektiven Fehlern führen. In vielen Fällen überwiegen jedoch die systematischen Fehler die subjektiven um ein Vielfaches. In der nachfolgenden Fehlerabschätzung werden diese beiden Fehlerquellen zwar behandelt, aber nicht explizit unterschieden.

Für die Ermittlung des Fehlerintervalles wurde eine abgebrochene Taylorsche Reihenentwicklung benutzt [vgl. z.B. 49]. Als maximales Fehlerintervall für X ergibt sich dann

$$\delta(X) \approx \sum_{i=1}^n \left| \frac{\delta X}{\delta x_i} \right| \cdot \delta_i \quad (19)$$

Für den Siedeverzug  $\Delta T$  ist diese Prozedur auf alle Einzelterme anzuwenden, die sich in den Gln. (10) und (11) finden. Durch den Zuschlag einer Temperaturdifferenz auf Grund des Flüssigkeitsdruckes zur Berechnung des Siedepunktes

$$T_{\text{sat}} = T_d + \Delta T_d(p_{\text{fl}}) \quad (20)$$

kommen weitere Fehlerterme hinzu, die durch einen generellen Unterschied in der Anzeige der Thermoelemente zu ergänzen sind. Dieser beträgt bei Thermoelementen gleicher Materialzusammensetzung

$$\delta(\text{Differenz}) \approx \pm 0,1^\circ\text{C} \text{ [50]}$$

Damit folgt für eine Abschätzung des Gesamtfehlerintervalls

$$\delta(\Delta T) = \delta(T_w) + \delta(T_{\text{sat}}) \quad (21)$$

oder in ausführlicher Form

$$\delta(\Delta T) = \left| \left( 1 + \frac{\Delta L_{31}}{\Delta L_{23}} \right) \right| \cdot \delta(T(3)) + \left| \frac{\Delta L_{31}}{\Delta L_{23}} \right| \cdot \delta(T(2))$$

Temperaturanteil

$$+ \left| \frac{\Delta T_{32}}{\Delta L_{23}} \right| \cdot \delta(\Delta L_{31}) + \left| \frac{(\Delta T_{32})(\Delta L_{31})}{(\Delta L_{23})^2} \right| \cdot \delta(\Delta L_{23})$$

Geometrieanteil



$T_{\text{sat}}$	$\Delta T$	$T_{23}$	$\delta(T_D(p_{fl}))$	$\delta(T_w)$	$\delta(T_{\text{sat}})$	$\delta(\Delta T)$
500	60	25	3,6	1,91	3,95	5,9
600	25	20	0,7	2,00	1,05	3,1
700	7	16	0,2	2,11	0,55	2,7
800	2,5	14	0,1	2,29	0,45	2,7
900	1	12	0,03	2,46	0,38	2,8

Tabelle 3: Abschätzung des Fehlerintervalls für den Siedeverzug  $\Delta T$   
(alle Werte in  $^{\circ}\text{C}$ )

Bei niedrigeren Siedetemperaturen zeigt sich deutlich der stark ansteigende Einfluß des Fehlers der Füllstandsmessung. Der Hauptanteil von  $\delta(T_w)$  stellt die Meßgenauigkeit der Temperatur  $T(I)$  in Verbindung mit dem Längenverhältnis von 1,75. Letzteres kann jedoch bei der engen Bauweise nicht mehr viel verbessert werden, wenn der radiale Temperaturgradient im heißen Finger nicht zu Verfälschungen führen soll.

Bei Siedetemperaturen um  $800^{\circ}\text{C}$  erreicht der Fehler die Größe des eigentlichen Meßwertes. In diesem Bereich ist natürlich ein Abbruch der Taylor-Reihe nach den Gliedern 1. Ordnung (vgl. Gl. (19)) nicht mehr gerechtfertigt. Für eine erste Abschätzung jedoch erscheint das Verfahren hier ausreichend.

## 5. Ergebnisse der Versuche und Nachuntersuchungen

Die Auswertung aller Versuchsserien, die in Tabelle 2 zusammengestellt sind, führte zu den nachfolgend erläuterten Ergebnissen. Es wurde dazu eine Unterteilung in vier Abschnitte vorgenommen:

- Einfluß der Höhlungsabmessungen
- Einfluß von Oxidgehalt und Testflächenmaterial
- Einfluß von gelöstem Gas

jeweils auf den Siedeverzug von Natrium. Der vierte Abschnitt behandelt

- die Ergebnisse der metallurgischen und chemisch-analytischen Nachuntersuchungen.

### 5.1 Der Einfluß der Höhlungsabmessungen

Mit den Testflächen Nr. 1 und Nr. 2 (vgl. Tabelle 1) wurden in mehreren Versuchsserien, auch in zeitlich größerem Abstand, mit heißfallengereinigtem Natrium die Abhängigkeit des Siedeverzuges von Natrium vom Höhlungsdurchmesser untersucht. Die Werte für den Siedeverzug liegen im Sättigungstemperaturbereich

$$500^{\circ}\text{C} \leq T_{\text{sat}} \leq 900^{\circ}\text{C}.$$

Die Ergebnisse für die ersten beiden Testflächen zeigt Abb. 19. In das Diagramm wurden in Form einer Kurvenschar Linien mit konstantem kritischen Keimradius eingezeichnet. Diese wurden nach Gl.(9) für vollständige Benetzung für

$$10^{-6} \text{ m} \leq r_{\text{krit}} \leq 10^{-2} \text{ m}$$

mit dem Programm NAPLOTPR gerechnet und gezeichnet (vgl. 4.3).

Die Versuchsergebnisse folgen mit einem gewissen Schwankungsbereich dem Verlauf der Kurve für den dem jeweiligen Höhlungsdurchmesser entsprechenden kritischen Keimradius ( $2 \cdot 10^{-5}$  bzw.  $1 \cdot 10^{-5}$  m). Die errechneten

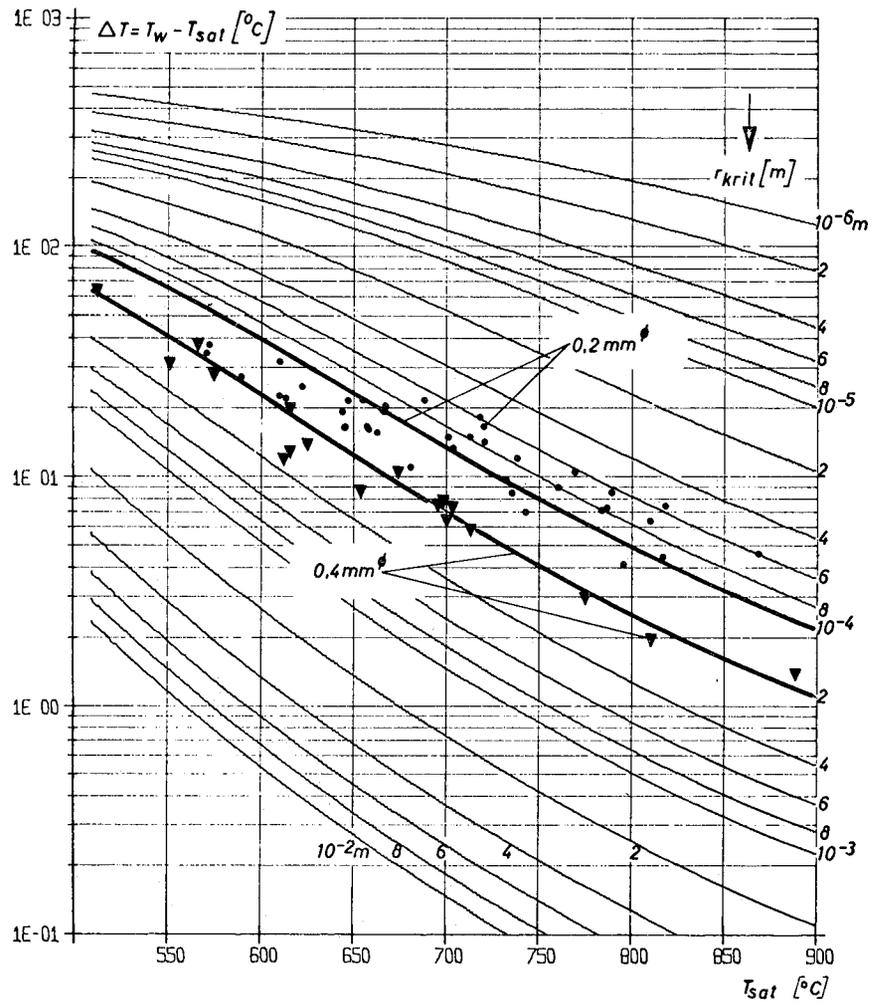
Mittelwerte RQ stimmen mit diesen kritischen Keimradien gut überein. Die Ergebnisse aller Testflächen mit 0,4 mm Bohrungsdurchmesser, aber verschiedener Bohrungstiefe, sind in Abb. 20 dargestellt. Zusätzlich sind die Werte für den Siedeverzug für Testfläche Nr. 10 eingezeichnet, die ohne Bohrung mit polierter Oberfläche untersucht wurde. Ein ausgeprägter Tiefeneinfluß ist aus diesen Ergebnissen nicht zu erkennen, wenn man von den Werten absieht, die ohne Bohrung gewonnen wurden. Jedoch muß in diesem Zusammenhang auf Abb. 25 in Abschnitt 5.2 hingewiesen werden, wo sehr wohl ein Einfluß der Höhlungstiefe auf den Siedeverzug sichtbar wird, wenn auch gekoppelt mit dem Oxidgehalt des Natriums.

Auch die mit unterschiedlicher Höhlungstiefe gewonnenen Ergebnisse folgen bei einer Veränderung der Siedetemperatur der theoretisch errechneten Kurvenform.

Wie aus Tabelle 2 zu ersehen ist, erstreckten sich diese Untersuchungen mit allen erforderlichen Einzeloperationen bei den einzelnen Testflächen über einen Zeitraum von mehreren Monaten. Ein Einfluß der Versuchsdauer auf die Siedeverzugswerte konnte in diesem Zeitraum bei den untersuchten makroskopischen Höhlungen nicht festgestellt werden. Auch eine denkbare Inaktivierung der künstlichen Keimzentren durch längeres Sieden oder höheren Druck trat nicht ein.

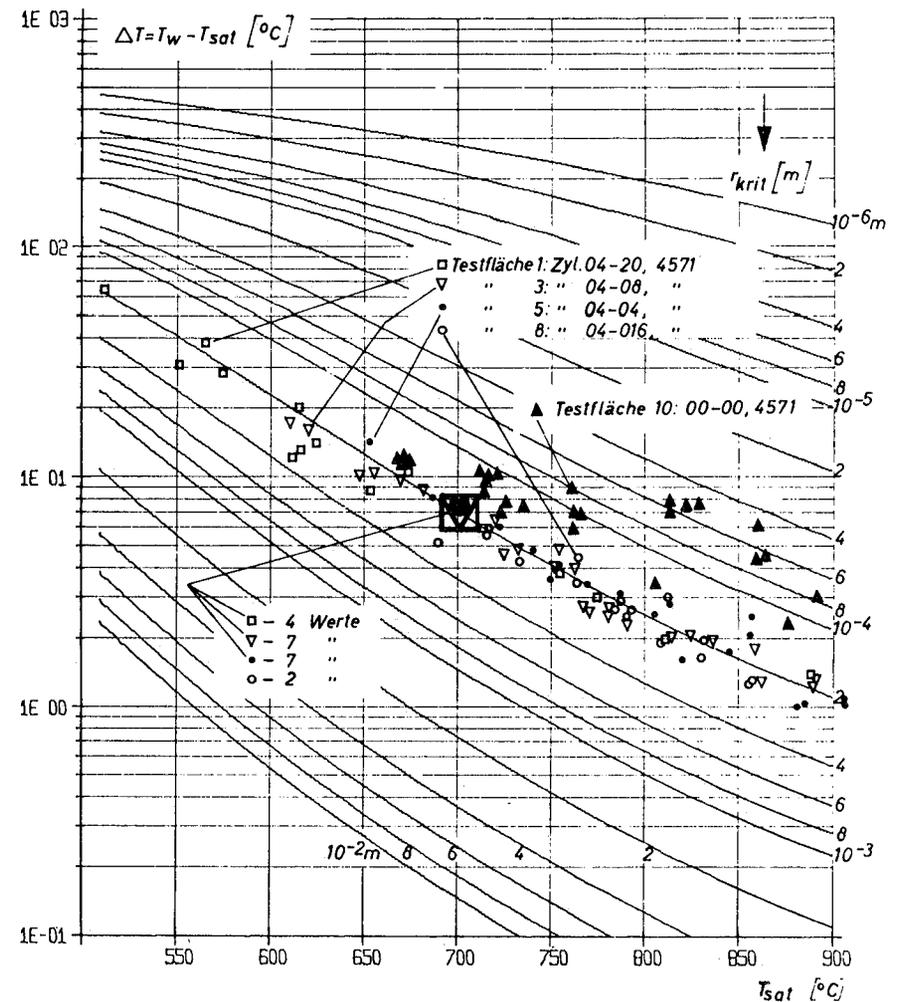
## 5.2 Der Einfluß von Oxidgehalt und Testflächenmaterial

Über den Einfluß des Oxidgehaltes auf den Siedeverzug gab es bisher nur spekulative Annahmen, experimentelle Ergebnisse sind nicht bekannt. Aus diesem Grund wurden mit den Testflächen Nr. 1 und Nr. 2 zunächst Übersichtsuntersuchungen durchgeführt. Diese Vorversuche erstreckten sich über einen größeren Siedetemperaturbereich und wurden für drei verschiedene Kaltfallentemperaturen ( $127^{\circ}\text{C}$ ,  $164^{\circ}\text{C}$  und  $185^{\circ}\text{C}$ ) mit entsprechenden Wiederholungen zur Überprüfung der Reproduzierbarkeit gefahren. Die Ergebnisse in Abb. 21 und Abb. 22 zeigen deutlich, daß die Siedeverzugswerte in verschiedenen Bereichen liegen. Auffallend ist, daß bei  $127^{\circ}\text{C}$  Kaltfallentemperatur der Siedeverzug bei beiden Testflächen höher ist, als für heißfallenreines Natrium.



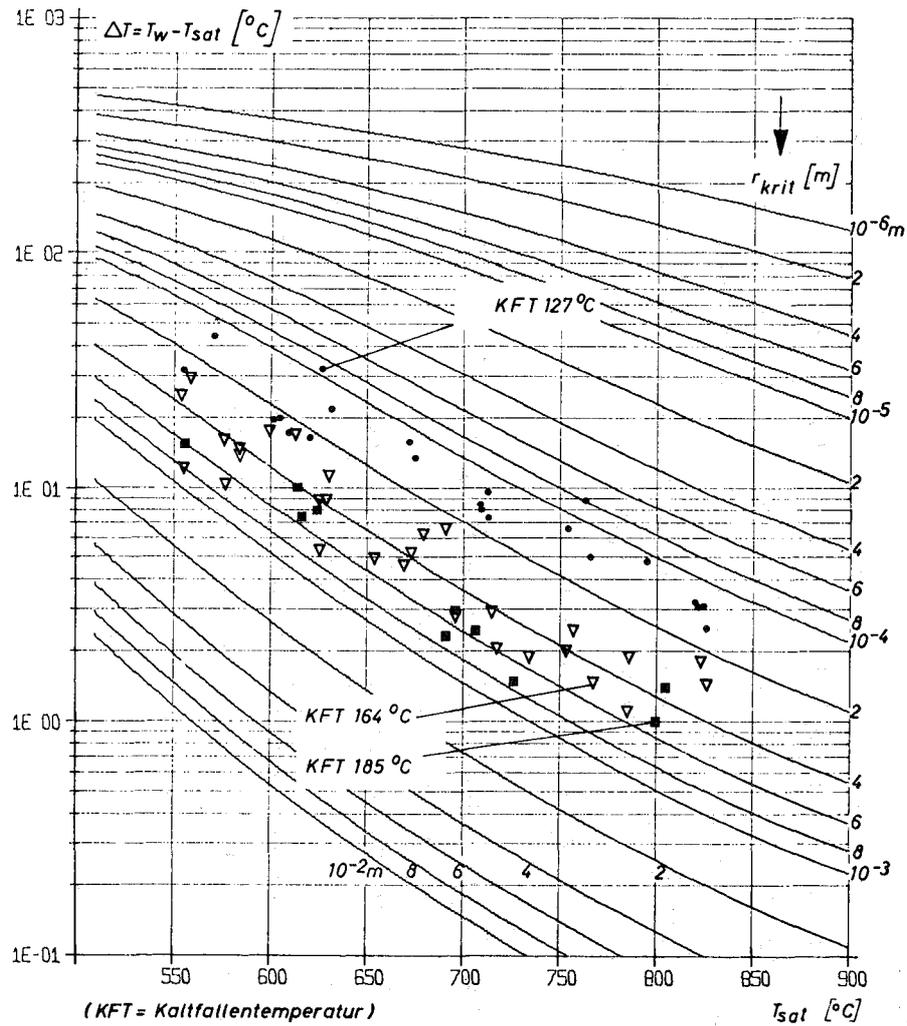
**Abb. 19** Siedeverzug von heißfallengereinigtem Natrium für zylindrische Hohlräume

- ▼ Testfläche 1 Zyl. 04-20-4541
- Testfläche 2 Zyl. 02-10-4571

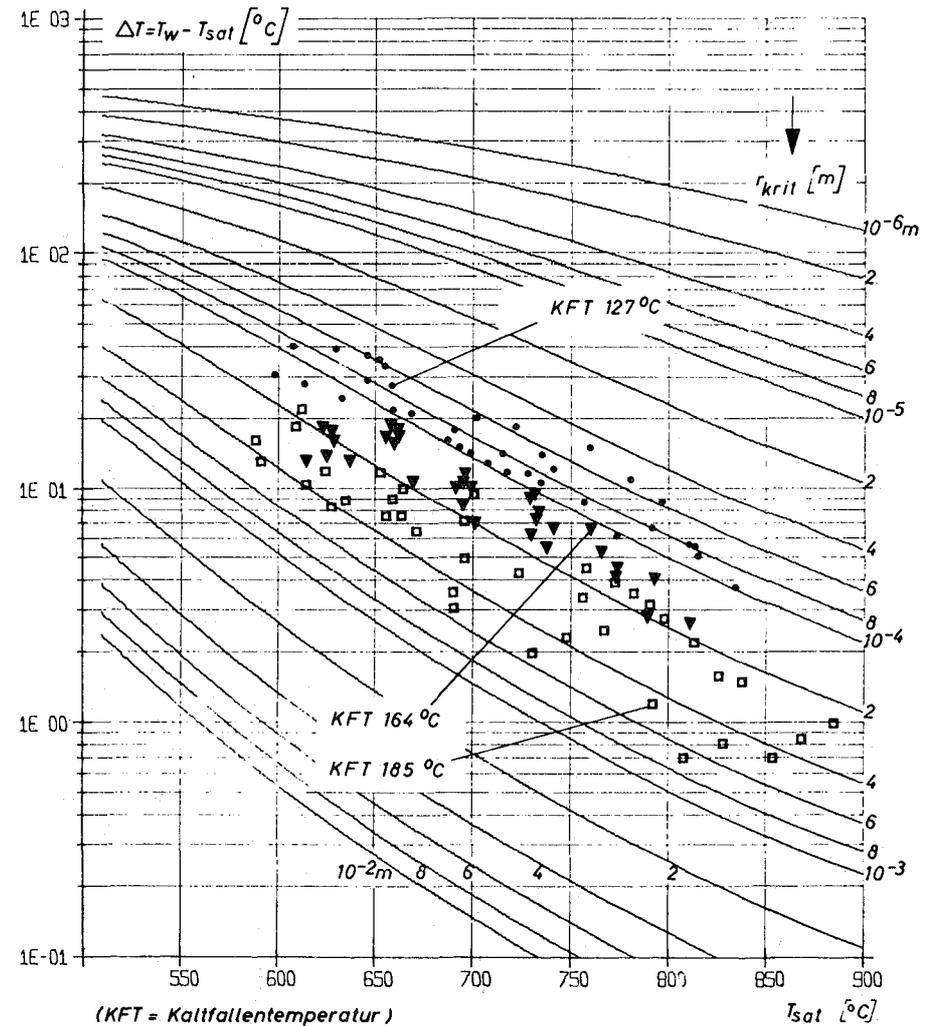


**Abb. 20** Siedeverzug von heißfallengereinigtem Natrium für zylindrische Hohlräume mit variabler Tiefe

- Testfläche 1 Zyl. 04-20-4541
- ▼ Testfläche 3 Zyl. 04-08-4571
- Testfläche 5 Zyl. 04-04-4571
- Testfläche 8 Zyl. 04-016-4571
- ▲ Testfläche 10 - 00-00-4571



**Abb. 21** Siedeverzug von Natrium mit verschiedenem Oxidgehalt; Vorversuche mit Testfläche 1 Zyl.04-20-4541



**Abb. 22** Siedeverzug von Natrium mit verschiedenem Oxidgehalt; Vorversuche mit Testfläche 2 Zyl.02-10-4571

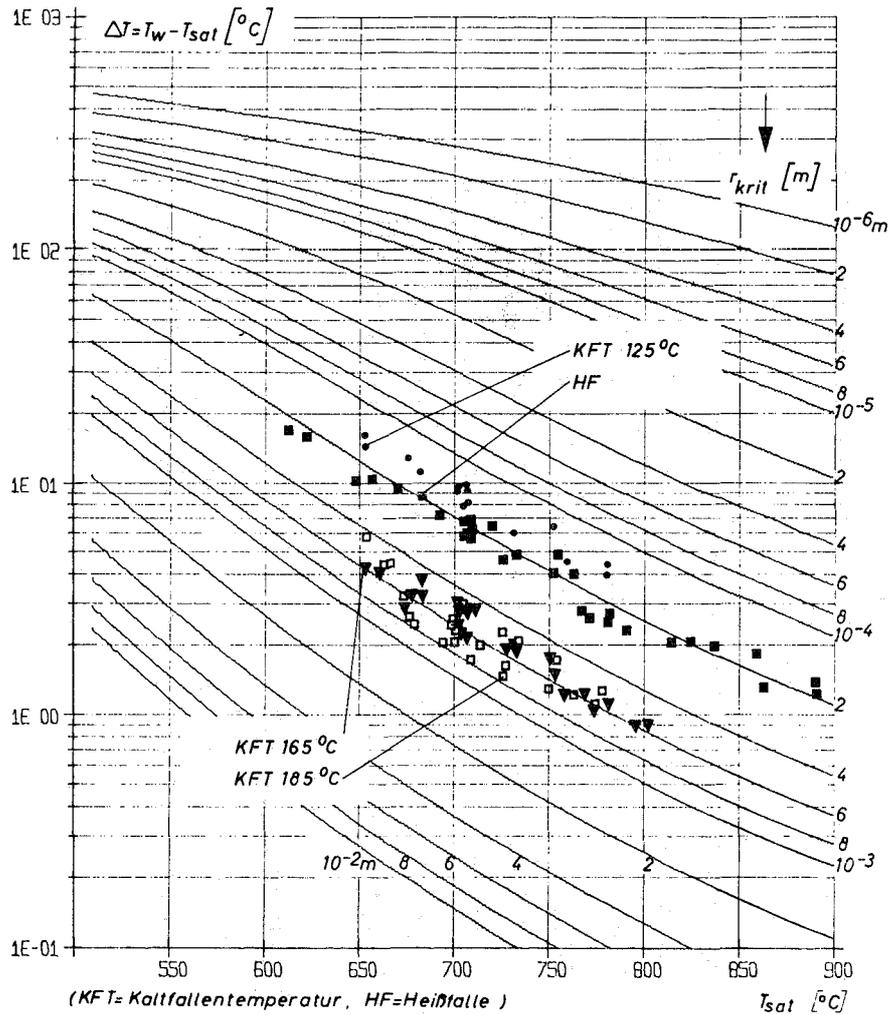
In der darauffolgenden, sehr differenzierten Versuchsreihe mit Testfläche Nr. 3 wurde dieses Verhalten genauer untersucht. Dazu wurde die Kaltfallentemperatur von Serie zu Serie in kleinen Schritten von ca.  $5^{\circ}\text{C}$ , ausgehend von  $120^{\circ}\text{C}$ , bis auf  $155^{\circ}\text{C}$  und dann in drei Schritten von je  $10^{\circ}\text{C}$  auf  $185^{\circ}\text{C}$  erhöht. Bei konstanter Siedetemperatur von etwa  $700^{\circ}\text{C}$  wurden jeweils mindestens 5 Einzelversuche durchgeführt (vgl. 4.2, Abb. 12 b). Als zusätzliche Überprüfung wurden bei den gleichen Kaltfallentemperaturen wie für Abb. 21 und Abb. 22 bei verschiedenen Siedepunkten Versuche durchgeführt, deren Ergebnisse in Abb. 23 dargestellt sind. Ein Vergleich mit den beiden Abbildungen davor zeigt, daß das gleiche Verhalten vorliegt.

Für die eigentliche Auswertung zum Einfluß des Oxidgehaltes auf den Siedeverzug wurden von jeder mit der Testfläche Nr. 3 durchgeführten Versuchsserie jeweils nur der Mittelwert verwendet (vgl. 4.3) und in Abb. 24 über der Kaltfallentemperatur aufgetragen. In der oberen Skala von Abb. 24 ist für die jeweilige Kaltfallentemperatur eine nach Eichelberger [46] berechnete Gleichgewichtsoxidkonzentration angegeben.

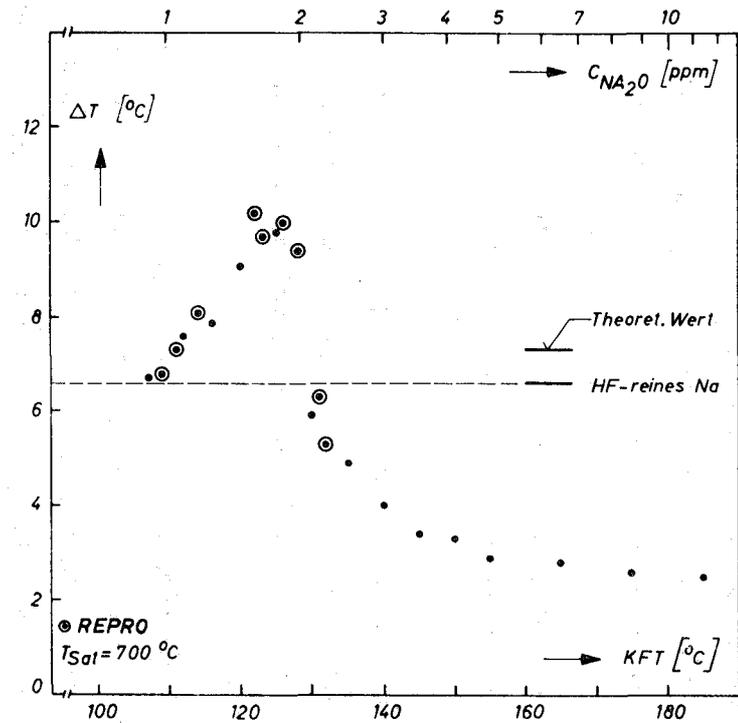
Die Reproduzierbarkeit ist sehr gut, wie die speziell gekennzeichneten Werte aus Wiederholungsserien zeigen.

Der Siedeverzug zeigt in Abhängigkeit von der Kaltfallentemperatur KFT ein ausgeprägtes Maximum bei  $\text{KFT} \approx 125^{\circ}\text{C}$ . Ausgehend von einem Wert nahe dem für heißfallenreines (HF-reines Na) Natrium ermittelten steigt der Siedeverzug zu dem genannten Maximalwert an und fällt dann unter den HF-Wert ab. Bei etwa  $160^{\circ}\text{C}$  Kaltfallentemperatur stellt sich ein unterer Grenzwert bei 30 % des HF-Wertes ein.

Diesen Verlauf zeigen alle mit rostfreiem Stahl (W.Nr. 4541, 4571) als Testflächenmaterial durchgeführten Versuchsreihen, wie aus Abb. 25 zu ersehen ist. Größere Abweichungen sind nur bei höheren Kaltfallentemperaturen bei der Bohrung mit geringster Tiefe festzustellen. Die etwas höheren Werte für Testfläche Nr. 5 (Zyl. 04-04-4571) bei niedrigen Kaltfallentemperaturen wurden mit keiner anderen Testfläche erreicht.



**Abb. 23** Siedeverzug von Natrium mit verschiedenem Oxidgehalt in Abhängigkeit von der Siedetemperatur  
Versuche mit Testfläche 3 Zyl. 04-08-4571



**Abb. 24** Siedeverzug von Natrium, Mittelwerte für  $T_{sat} = 700$  °C = konst. in Abhängigkeit von der Kaltfalltemperatur KFT für Testfläche 3 Zyl. 04-08-4571

Die Ergebnisse für den Werkstoff Nr. 4571 (X10 Cr Ni Mo Ti 18 10) führten zu einer genaueren Untersuchung seiner Hauptkomponenten Eisen, Nickel und Chrom mit den Testflächen 4, 6 und 9. Die Versuchsdurchführung war die gleiche wie bei Testfläche 3. Die Ergebnisse für die drei untersuchten Elemente zeigt Abb. 26. Die eingezeichnete Kurve für den Verlauf des Siedeverzuges für rostfreien Stahl erleichtert den Vergleich.

Für das zuerst untersuchte Nickel konnte das Maximum nicht festgestellt werden. Die Siedeverzugswerte für die Nickelteststrecke fallen mit steigender Kaltfallentemperatur leicht ab und erreichen etwa den gleichen unteren Grenzwert wie Stahl.

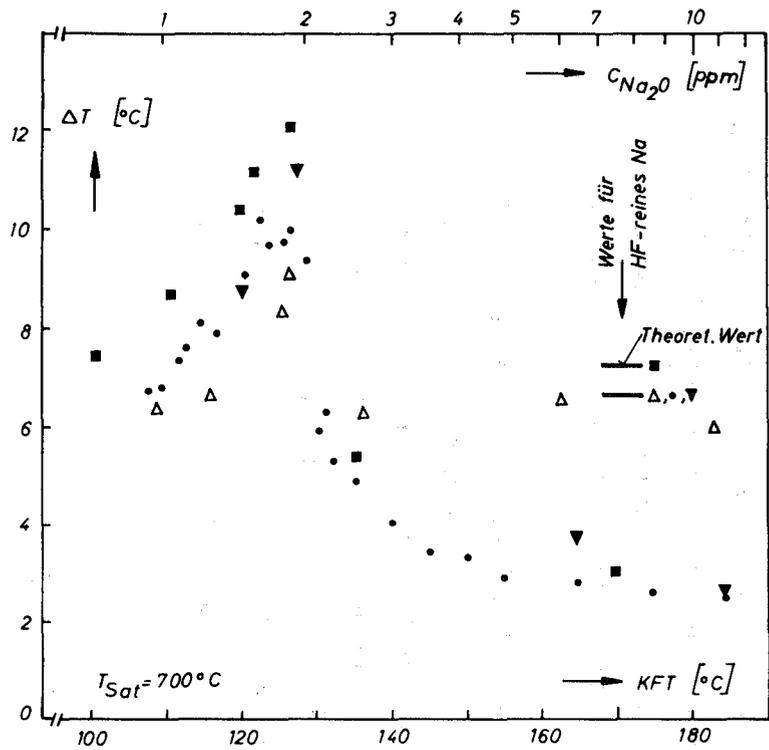
Mit der Reineisen-Testfläche (Armco-Eisen) wurden generell nur sehr niedrige Siedeverzüge gemessen, die keine Abhängigkeit vom Oxidgehalt bzw. der Kaltfallentemperatur erkennen lassen. Auch das Ergebnis für HF-reines Natrium liegt hier auf dem gleichen tiefen Niveau, wie Abb. 26 zeigt. Für die anderen Materialien dagegen liegen die HF-Werte alle in der Umgebung des theoretischen Siedeverzugswertes für  $r_{krit} = 0,2$  mm.

Das mit der Testfläche Nr. 9 untersuchte reine Chrom zeigte schließlich die gleiche Abhängigkeit des Siedeverzuges vom Oxidgehalt wie Stahl 4571. Das Maximum wurde auch hier durch Wiederholungsmessungen überprüft.

Für alle untersuchten Werkstoffe wurden nach Gl.(20) für jeden Mittelwert  $RQ(\Delta T)$  im sinnvollen Bereich  $RQ \geq D/2$  (vgl. 4.3) der Benetzungswinkel  $\theta$  an der Phasengrenzlinie berechnet. In Abb. 27 sind die Werte für  $\theta$  ebenfalls über der Kaltfallentemperatur aufgetragen. Während bei Eisen und Nickel der Benetzungswinkel im gesamten untersuchten Bereich errechnet werden kann, gibt es bei Stahl und Chrom eine Lücke zwischen 1 ppm und 3 ppm  $Na_2O$ . In diesem Bereich wurden höhere Siedeverzüge gemessen, als der theoretisch für den Bohrungsdurchmesser errechnete Wert.

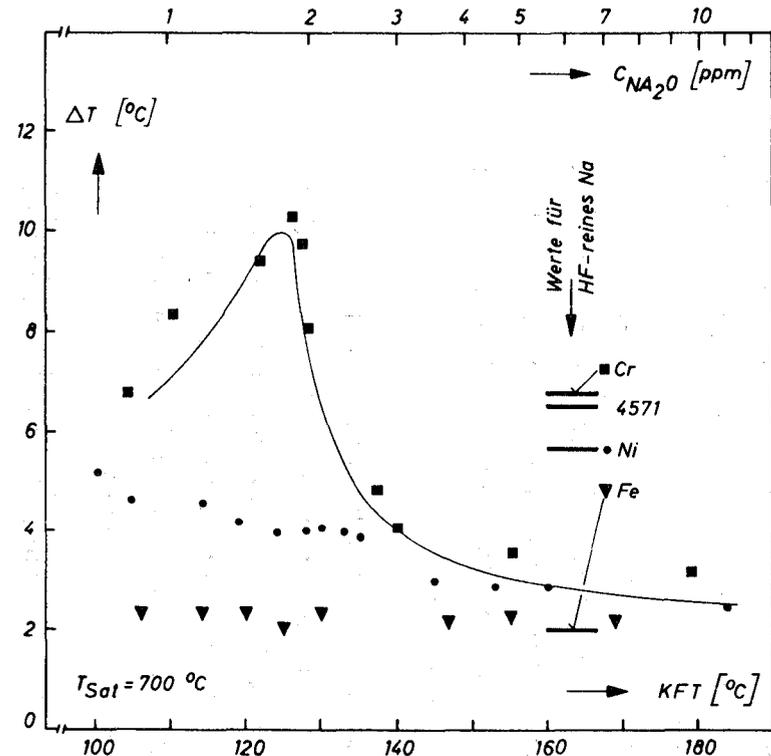
### 5.3 Der Einfluß von gelöstem Gas

Die Untersuchung des Einflusses von gelöstem Argon auf den Siedeverzug von Natrium wurde in der im Abschnitt 4.2 beschriebenen Weise durchgeführt.



**Abb. 25** Siedeverzug von Natrium, Mittelwerte für  $T_{\text{Sat}} = 700^\circ\text{C} = \text{konst.}$  in Abhängigkeit von der Kaltfallentemperatur  $KFT$  und der Höhluntiefe

- ▼ Testfläche 1 Zyl. 04-20-4541
- Testfläche 3 Zyl. 04-08-4571
- Testfläche 5 Zyl. 04-04-4571
- △ Testfläche 8 Zyl. 04-016-4571
- Testfläche 10 00-00-4571



**Abb. 26** Siedeverzug von Natrium, Mittelwerte für  $T_{\text{Sat}} = 700^\circ\text{C} = \text{konst.}$  in Abhängigkeit von der Kaltfallentemperatur und dem Testflächenmaterial

- Testfläche 3 Zyl. 04-08-4571
- Testfläche 4 Zyl. 04-08-Ni
- ▼ Testfläche 6 Zyl. 04-08-Fe
- Testfläche 9 Zyl. 04-08-Cr

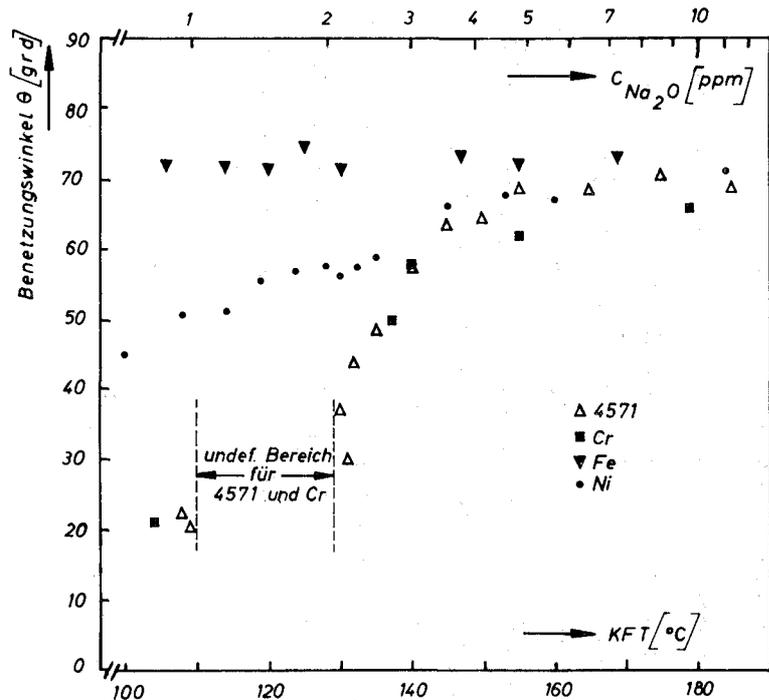
Die Ergebnisse dieser Versuche zeigt Abb. 28. Zum Vergleich sind die Siedeverzugswerte von Versuchen mit gleicher Kaltfallentemperatur aber ohne gelöstes Argon mit eingezeichnet.

Von 12 Einzelversuchen mit gelöstem Gas liegen 9 im Streubereich der Vergleichsversuche ohne Argon. Die Verteilung der Werte für 1 ata und 2 ata Lösungsdruck ist nicht systematisch, obwohl bei doppeltem Lösungsdruck und sonst gleichen Bedingungen nach dem Henry'schen Gesetz [z.B. 47] die doppelte Menge Argon gelöst ist.

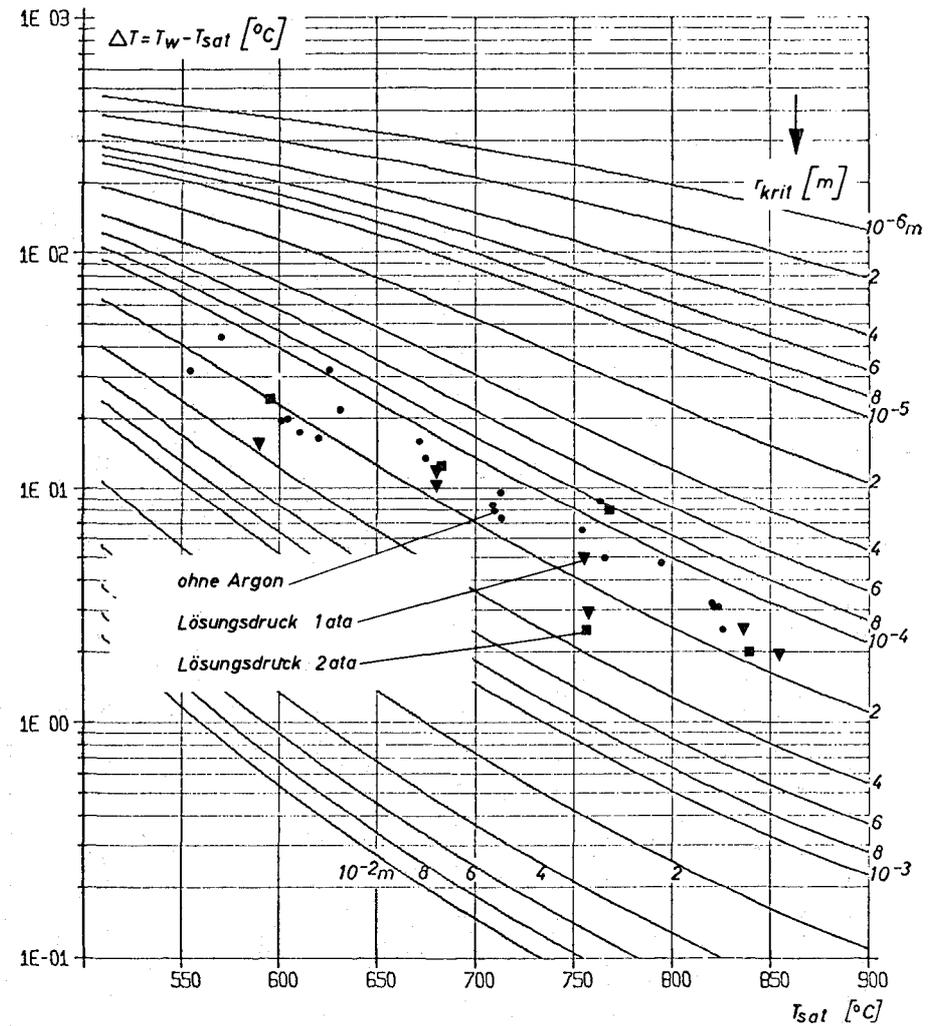
Wenn ein Einfluß von gelöstem Gas auf den Siedeverzug vorliegt, so ist er weit geringer als derjenige des Oxidgehaltes, wie ein Vergleich von Abb. 21 mit Abb. 28 zeigt. Die Versuche mit gelöstem Argon wurden wegen der unsystematischen Ergebnisse und der nicht erkennbaren Beeinflussung des Siedeverzuges zugunsten einer genaueren Untersuchung des Sauerstoff- und Materialeinflusses abgebrochen.

Unter diesen Abschnitt fallen auch die Ergebnisse einer Versuchsserie zur Überprüfung des Einflusses der Temperatur-Druck-Vorgeschichte eines Systems auf den Siedeverzug nach der Holtz-Singer-Theorie [17, 39]. In 4.2 wurde der Verlauf der Versuche beschrieben und in Abb. 15 dargestellt. In dieser Abbildung sind auch die Ergebnisse für den jeweils gemessenen Siedeverzug angegeben. Im Gegensatz zu den Ergebnissen von Chen [39], die mit technisch rauhen Oberflächen und einer Kobalt-Basislegierung (Haynes 25) gewonnen wurden, zeigen die hier ermittelten Siedeverzugswerte keine Abhängigkeit von der Vorgeschichte. Die Versuche wurden allerdings mit rostfreiem Stahl und einer einzigen makroskopischen Höhlung anstelle einer Rauigkeitsverteilung durchgeführt (vgl. [40]).

Auch die im ersten Teil dieses Abschnittes besprochenen Versuche mit gelöstem Argon können als Ergänzung dieser Versuchsgruppe zum Einfluß des Druckes vor dem Siedebeginn auf den Siedeverzug angesehen werden. Im Unterschied zu den in Abb. 15 gezeigten Werten wurde die Testfläche statt 5 - 10 Minuten jedoch 10 Stunden lang mit dem jeweiligen Lösungsdruck beaufschlagt, was ebenfalls ohne Einfluß auf die Ergebnisse blieb. Eine Zeitabhängigkeit ist hier ebensowenig feststellbar wie bei den unter 5.1 aufgeführten Versuchsserien.



**Abb. 27** Berechnete Benetzungswinkel für Werkstoff 4571, Ni, Fe und Cr in Abhängigkeit von der Kaltfallentemperatur  $KFT$



**Abb. 28** Siedeverzug von Natrium mit gelöstem Argon

Kaltfallentemperatur  $127^\circ C$   
 Testfläche 1 Zyl 04-20-4541

#### 5.4 Metallographische und chemisch-analytische Nachuntersuchungen

Nach Abschluß der Versuche mit einer Testfläche wurde diese ausgebaut und mit Isopropanol und destilliertem Wasser gereinigt. Danach wurde die Oberfläche zunächst mit blosem Auge auf weitere Siedezentren untersucht. Diese Zentren zeichnen sich durch einen gut sichtbaren Hof aus schwärzlichen Korrosionsprodukten aus (möglicherweise  $\text{NaCrO}_2$  [22]), der in Abb. 29 deutlich erkennbar ist. In dieser Form traten die Siedezentren nur bei der Testfläche Nr. 1 auf, deren "heißer Finger" noch mit einer Strahlungheizung versehen war, die größere Testflächenbereiche erfassen konnte.

Eine mikroskopische Beobachtung der Oberfläche zeigte, daß sich innerhalb dieser Korrosionszonen kreisrunde Höhlungen befinden, die etwa halbkreisförmigen Querschnitt haben (Abb. 30).

Einen ähnlich deutlichen Korrosionsangriff zeigte nur noch die Nickeltestfläche. Die Abb. 31 und 32 lassen den Gegensatz zwischen einer Cr-Ni-Stahloberfläche und der Nickelfläche klar erkennen. Beide Abbildungen zeigen den Bereich um die künstliche Bohrung (0,4 mm  $\varnothing$ ). Während die Stahloberfläche praktisch keinen Angriff erkennen läßt, trägt die Nickelfläche starke Abtragungsspuren, womit bei niedrigen Sauerstoffgehalten ( $< 50$  ppm) in der Anfangsperiode ( $< 1500$  h) gerechnet werden mußte [21].

Die Reineisenfläche entspricht in ihrem Aussehen nach den Versuchen etwa der Stahlfläche und ist deshalb hier nicht abgebildet.

Die Chromtestfläche (Abb. 33) war nach den Versuchen zwar eben aber sehr grobkörnig und mit einem Netz von feinsten Rissen entlang der Korngrenzen überzogen. Ein weiteres Siedezentrum wie z.B. in Abb. 29 konnte auf der Chromfläche selbst nicht gefunden werden. Die umgebende Stahlfläche jedoch zeigt an mehreren Stellen einen Korrosionsangriff in Form von kreisrunden Punkten von etwa 0,05 mm Durchmesser, aber ohne den schwarzen Hof wie in Abb. 29 oder 30.

Einen Eindruck von der Benetzungsfähigkeit von Natrium vermitteln die feinen Risse in der Chromplatte, die einige  $\mu\text{m}$  breit sind. Obwohl die Testfläche mehrmals sorgfältig mit Isopropanol und Wasser gereinigt

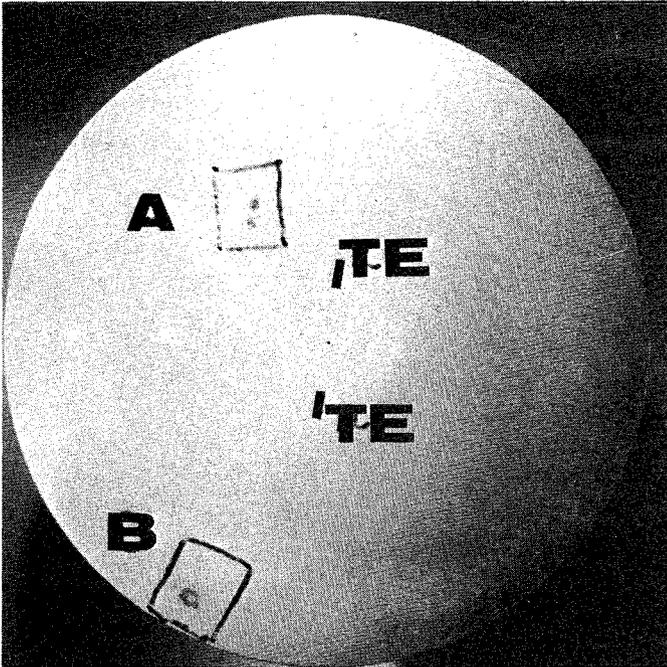


Abb. 29:

Testfläche Nr. 1 (W.Nr. 4541)  
nach Versuch mit künstlichen  
(Mitte) und natürlichen Siede-  
zentren (A und B)

TE = Thermoelemente (Einbau-  
richtung)

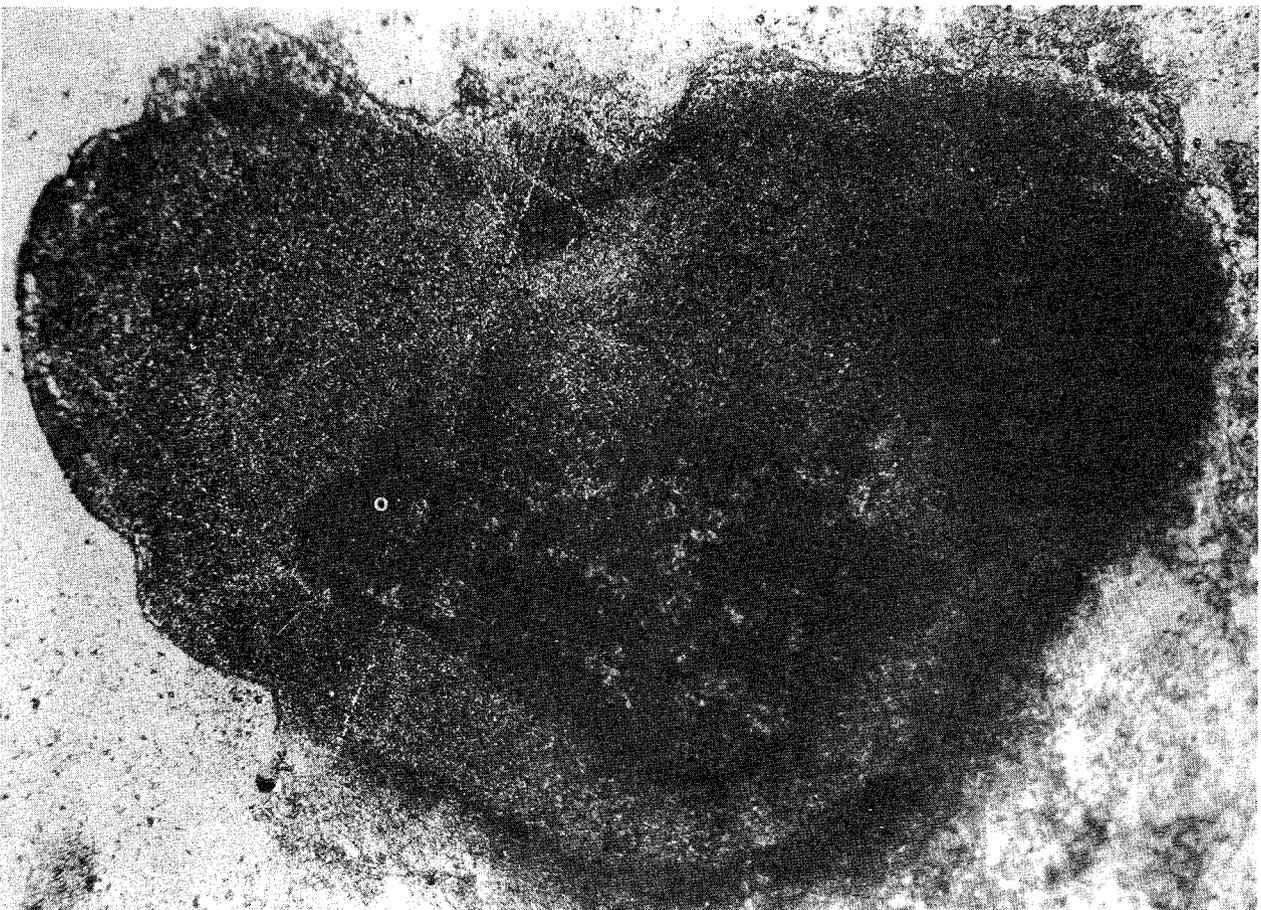


Abb. 30: Natürliches Siedezentrum (Kreis) mit Hof aus Korrosionsprodukten  
(Stelle A)

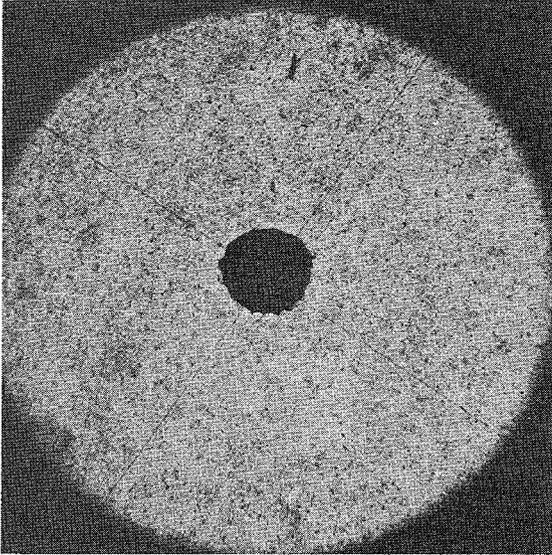


Abb. 31: Stahloberfläche  
Bereich der künstlichen  
Höhlung nach Versuch

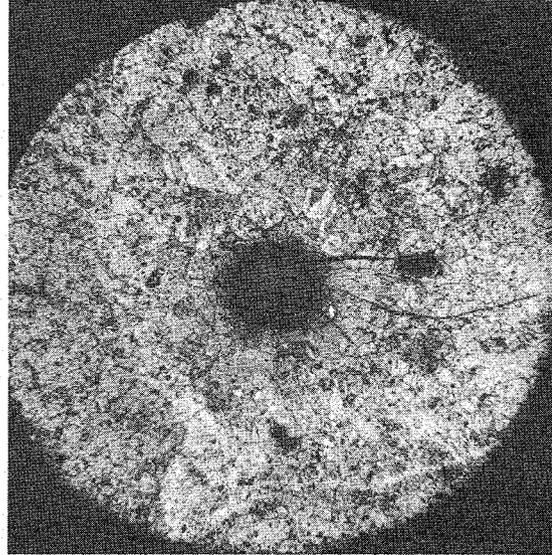


Abb. 32: Nickeltestfläche  
Bohrung nach Versuch

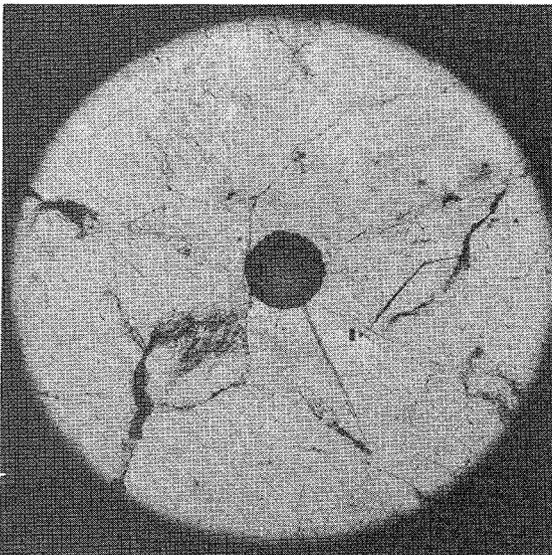


Abb. 33: Chromtestfläche  
Bohrung nach Versuch  
(trocken nachgereinigt)



Abb. 34: Chromtestfläche  
(wie Abb. 33)  
mit ausblühendem NaOH  
an den Mikrorissen

wurde, zeigt sich an den Rissen noch nach Tagen NaOH-Blüte, die durch Reaktion von Natrium mit der Luftfeuchtigkeit aus den Spalten austritt (Abb. 34).

Außer der reinen Oberflächenbeobachtung wurde von der Testfläche Nr. 1 (Werkst.Nr. 4541) und von der Nickeltestfläche Schliffe senkrecht zur Oberfläche angefertigt und metallographisch untersucht<sup>1)</sup>.

Da an der Stahltestfläche im Bereich der künstlichen Höhlung keine direkt sichtbaren Korrosionsspuren feststellbar waren, wurde eine Konzentrationsuntersuchung für die Elemente Fe, Ni und Cr mit der Elektronenstrahlmikrosonde durchgeführt. Abb. 35 a) zeigt den Ort am Bohrungsgrund, an dem die Konzentrationsprofile aufgenommen wurden. In Abb. 35 b) ist eine entsprechende Monitorkurve gezeigt. Für alle drei Elemente wurden gleichartige Profile gefunden. Die für Korrosionszonen typische Versetzung oder eine Anreicherung von Chrom, wie sie in der Anfangsperiode eines Korrosionsprozesses möglich wäre [22], konnte nicht nachgewiesen werden. Daraus läßt sich nur schließen, daß die Schichtdicke der Korrosionsschicht in der Bohrung noch unterhalb des Auflösungsvermögens der Sonde (ca. 1  $\mu\text{m}$ ) liegt. Weitere Aussagen sind mit dieser Methode nicht möglich.

Der Schliff durch die Nickeltestfläche wurde nach einer leichten Ätzung mit dem Metallmikroskop an mehreren Stellen fotografiert. Der Oberflächenbereich war vom Natrium stark angegriffen (Abb. 36 a), was bereits aus der Oberflächenuntersuchung bekannt war. An den Korngrenzen wurde eine tieferreichende Korrosionswirkung gefunden, die zur Spaltenbildung führte (Abb. 36 b). Mehrfach wurden an der Schliffoberkante schwammartige poröse Stellen beobachtet (Abb. 36 a und c). Besonders in Abb. 36 c ist außer der dunkleren Korrosionszone noch eine in etwa drei Schichten ins Materialinnere hin immer feiner werdende Porenbildung zu erkennen, die möglicherweise auf Lösungs- und Diffusionseffekten zwischen Nickel und Natrium beruht.

---

1) durchgeführt im Institut für Material- und Festkörperforschung des Kernforschungszentrums Karlsruhe

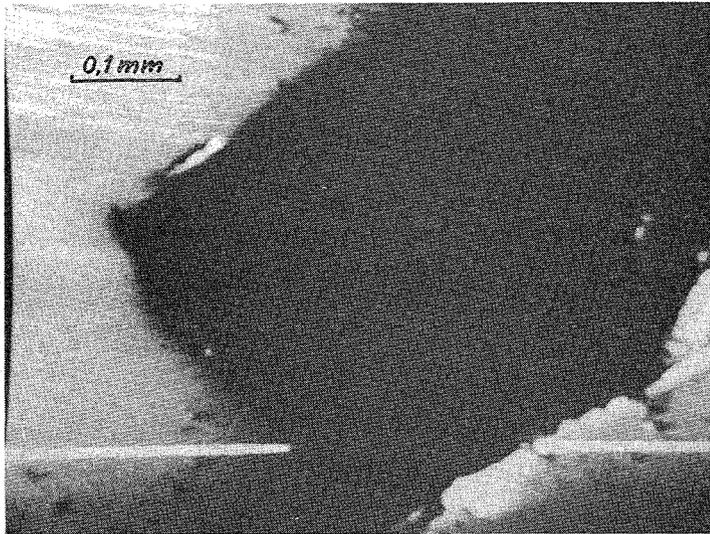


Abb. 35a: Weg der Elektronenstrahlmikrosonde  
am Bohrungsgrund (Testfläche Nr. 1)

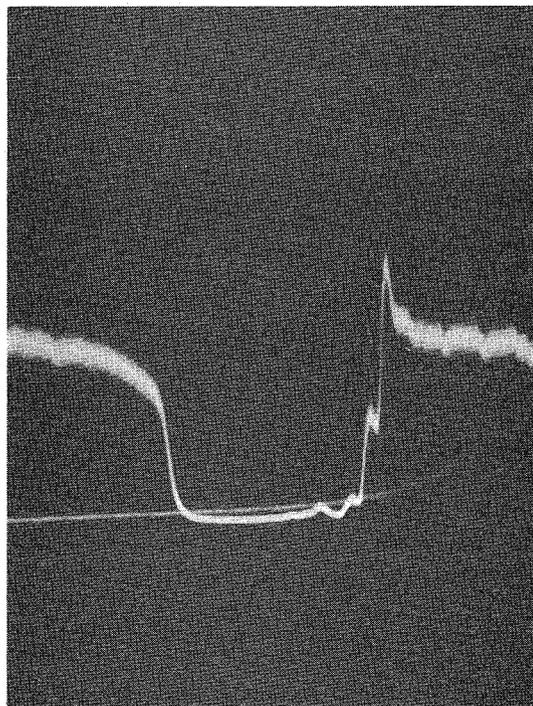


Abb. 35b: Konzentrationsprofil (Monitorkurve)  
zu Abb. 35a)

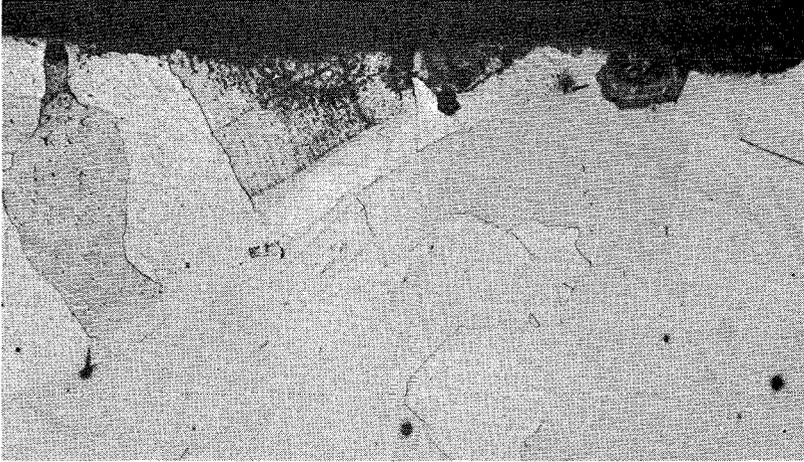


Abb. 36a: Schliff der Testfläche Nr. 4 (Ni), Vergr. 100x

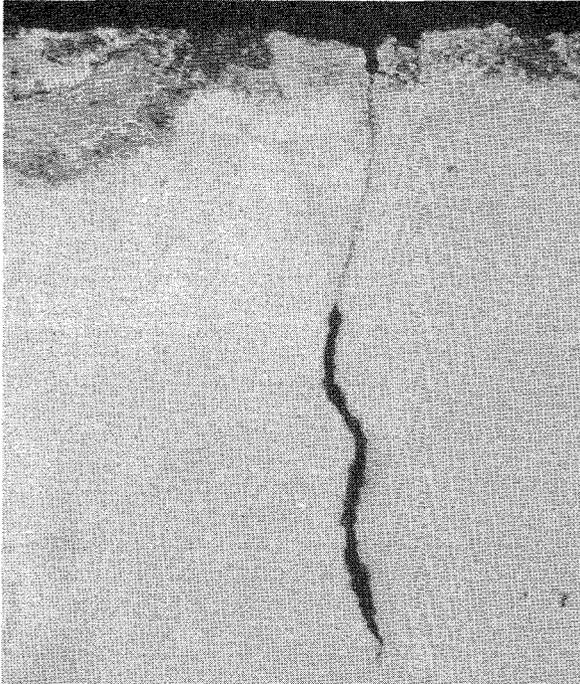


Abb. 36b: Interkristalliner  
Spalt  
Vergr. 750x

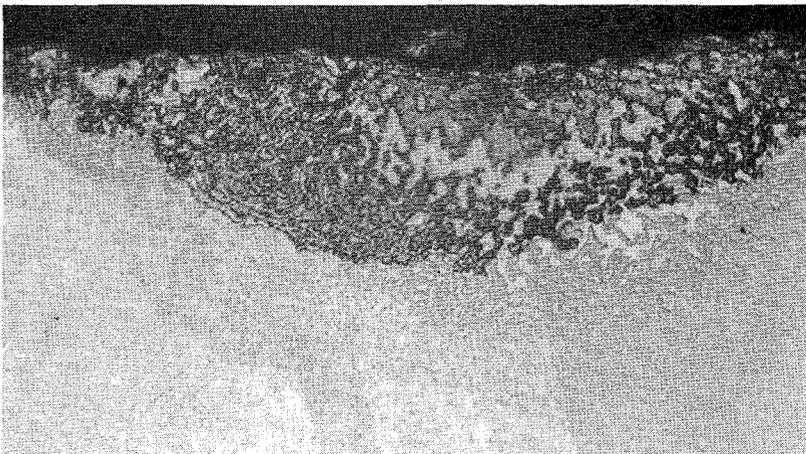


Abb. 36c: Poröse Oberflächenschicht, Vergr. 750x

Zusätzlich zu diesen metallographischen Untersuchungen wurden alle Testflächenmaterialien naßchemisch analysiert. Die Analysen waren insbesondere auf mögliche Oxidbildner ausgerichtet, deren freie Bildungsenthalpie für Oxid unter derjenigen von Natriumoxid  $\text{Na}_2\text{O}$  liegt (vgl. Anhang Abb. A 3). Als möglicherweise vorhandene Elemente wurden

Silizium

Aluminium

Mangan

Titan

Molybdän gesucht und ihr Anteil fest-

gestellt. Für das Reineisen wurde zusätzlich noch der Kohlenstoffgehalt ermittelt. Die Ergebnisse der Analysen sind in Tabelle 4 zusammengefaßt.

Testfläche Nr.	Si	Mn	Cr	Ni	Ti	Al	Mo	Fe	Co	C	Material
1	0,48 0,51	1,1 1,1	17,92 17,93	9,95 9,75	0,34 0,33	0,03	0,31 0,32				4541
2	0,55 0,60	1,15 1,1	17,51 17,46	11,98 11,96	0,31 0,34	0,04 0,04	2,01 2,0				4571
3	0,60 0,59	1,12 1,12	17,62 17,53	11,9 11,9	0,30 0,30	0,04 0,04	2,07 1,98				4571
4		0,15 0,15				0,01		0,06 0,06	0,01		Ni
5	0,50 0,53	1,1 1,1	18,35 18,33	10,8 11,0	0,45 0,47	0,03	2,10 2,14				4571
6		0,01				0,01				0,02 0,02	Fe (ARMCO)
7	Elektrolytisch abgeschiedenes Chrom										
8	wie 5										4571
9	Elektrolytisch abgeschiedenes Chrom										
10	wie 5										4571

Tabelle 4: Ergebnisse der naßchemischen Materialanalysen in Gew. %

## 6. Diskussion der Ergebnisse

Wie bereits in der Einführung (Kap. 2) dargelegt wurde, besteht zwischen der für einfache homogene Phasenumwandlungen aufgestellten Theorie [1, 2] und der vielfältigen heterogenen Wirklichkeit ein bislang unüberbrückbarer Unterschied. Die in dieser Arbeit gewonnenen Ergebnisse weisen jedoch ein weiteres Mal darauf hin, daß die Frage nach den Vorgängen bei der Bildung eines ersten Keimes einer neuen Phase nach wie vor aktuell ist. Infolge der komplexen Zusammenhänge darf von diesen Ergebnissen natürlich kein allgemeingültiges Modell erwartet werden. Auch kann eine theoretische Lösung der energetischen Verhältnisse in einem heterogenen mehrphasigen Volumenelement nicht gegeben werden, weil u.a. einfach grundlegende Beziehungen der molekularen Wechselwirkung in Grenzschichten bisher ungeklärt sind [27].

Die in Kap. 5 dargestellten Ergebnisse lassen aber einige Schlüsse über den Einfluß verschiedener Größen auf die Keimbildung und damit auf den hier untersuchten Siedeverzug zu. Im einzelnen werden folgende Problemkreise behandelt:

- die Existenz von Restgaskeimen, die insbesondere in amerikanischen Untersuchungen [17, 39, 54] für die Erklärung verschiedenster Phänomene herangezogen werden
- der Einfluß von Oberflächenbelägen aus Reaktionsprodukten oder Lösungen aller am Prozeß beteiligten Stoffe und daraus folgend
- die Erwägung von flächigen Keimen als Ursprungsform der Dampfblasen.

Abschließend werden einige Möglichkeiten für weitere Untersuchungen zur Frage der Keimbildung beim Sieden von Flüssigmetallen kurz skizziert.

### 6.1 Keimbildung durch Restgas

Ausgehend von Gl.(5) und den Verhältnissen bei Wasser und organischen Flüssigkeiten ist die Bildung einer kritischen Dampfblase aus einem

Restgaspolster in einer engen Höhlung auch bei Flüssigmetallen zunächst nicht auszuschließen.

Die Existenz derartiger Gasrückstände an Wänden ist eng mit der Benetzungsfähigkeit der jeweiligen Flüssigkeit verbunden. Im Falle völliger Benetzung der festen Wand werden Gasreste eingeschlossen. In der dann entstehenden Blase stellt sich ein Gleichgewichtsdruck entsprechend der Oberflächenspannung der Flüssigkeit und dem Systemdruck ein. Dieser Druck bewirkt eine veränderte Gleichgewichtslage im Lösungsprozeß zwischen Gas und Flüssigkeit zuungunsten der Gasphase. Durch den einsetzenden Lösungsvorgang verschwinden Gasblasen der hier angesprochenen Dimensionen nach einiger Zeit.

Für Natrium kann auf Grund von bisherigen Untersuchungen [24, 25, 56, 57] bei Temperaturen über 350°C vollständige Benetzung von metallischen Oberflächen der hier untersuchten Art angenommen werden. Dies gilt in verstärktem Maße bei höheren Temperaturen zwischen 600°C und 900°C, die bei Siedeversuchen notwendig sind.

Wie die vorliegenden Versuchsergebnisse und die Nachuntersuchungen zeigen, werden dann auch interkristalline Spalte von wenigen  $\mu$ m Breite benetzt (vgl. Abb. 33 und 34), was bei Ausbau des Anlagenteiles an Luft zu einem NaOH-Austritt noch nach Tagen führt. Die entsprechend hohen Siedeverzugswerte, die auf eine Aktivierung derartiger kleiner Keime hinweisen würden, konnten jedoch hier in keinem Fall gemessen werden.

Dies gilt in gleicher Weise für eine eventuelle Aktivierung weitaus kleinerer Keime in engen Spalten am Grund oder an der Wand der makroskopischen künstlichen Höhlungen, die in dieser Arbeit untersucht wurden.

Die Bildung eines Restgaskeimes durch Gaseinschluß beim Einfüllvorgang, wie sie im Modell von Bankoff [9] angenommen wird, muß bei derartig großen Bohrungen ebenfalls in Betracht gezogen werden. Diese Möglichkeit wurde daher rechnerisch genauer behandelt.

Der Einfüllvorgang läuft bei Temperaturen zwischen 300°C und 400°C ab. Der Testbehälter ist vorher mit Argon gespült, bei 400°C ausgeheizt und auf ca.  $10^{-4}$  Torr evakuiert worden. Somit braucht nach den Erfahrungen

der Vakuumtechnik [58] nicht mehr mit adsorbierten Gasmolekülen gerechnet werden. Das freie eingeschlossene Argonvolumen einer zylindrischen Bohrung von 0,4 mm Durchmesser und 2 mm Tiefe ergibt dann im Gleichgewicht mit der Oberflächenspannung des Natriums von 400°C eine Kugelblase von etwa 0,4  $\mu\text{m}$  Durchmesser mit 17 ata Innendruck. Dabei ist angenommen, daß keine Lösung des Gases in der Flüssigkeit stattfindet.

Eine überschlägige Berechnung der Lösungszeit wurde in einer zweiten getrennten Phase durchgeführt. Zur Vereinfachung wird dabei angenommen, daß die 0,4  $\mu\text{m}$ -Blase in Natrium eingesetzt ist, das bei 1 ata Partialdruck mit Argon gesättigt ist. Für die Rechnung kann die Anfangskonzentration von  $2 \cdot 10^{-9}$  mol Ar/mol Na gegen die dem Blaseninnendruck entsprechende Sättigungskonzentration von  $3 \cdot 10^{-8}$  mol Ar/mol Na [28] vernachlässigt werden.

Weiter wurde angenommen, daß sich das Argon in einer Natrium-Kugelschale von  $10^{-4}$  m äußerem Radius um die Gasblase lösen soll, was einem vielfachen des erforderlichen Natriumvolumens entspricht. Mit einem Diffusionskoeffizienten von etwa  $10^{-4}$   $\text{cm}^2/\text{s}$  [28] ergibt sich aus der Lösung des 2. Gesetzes von Fick nach [47] für die Bedingung, daß am Rand der Natriumschale 80 % der Sättigungskonzentration erreicht werden, eine Lösungszeit in der Größenordnung von 10 Sekunden.

Dabei ist nicht berücksichtigt, daß der Druck in der schrumpfenden Blase als die treibende Kraft ständig zunimmt, wodurch die Sättigungskonzentration steigt und das erforderliche Natriumvolumen kleiner wird. Die Lösungszeit wird dadurch weiter stark reduziert.

Auf eine Untersuchung etwa hinsichtlich des Einflusses steigender Temperatur und damit steigender Gaslöslichkeit wurde verzichtet, da ein stabiler Gaskeim bereits bei dem erwähnten Ausgangszustand nicht "lebensfähig" ist.

Eine ähnliche eindeutige Aussage läßt sich über die Verhältnisse bei den Versuchen zum Einfluß der Gaslöslichkeit auf den Siedeverzug machen. Da das Argon unterhalb der Siedetemperatur gelöst wurde, ist das

Natrium bei Siedebeginn mit Argon ungesättigt. Für das Gas besteht also keine Veranlassung, selbst eine Keimblase gegen Oberflächenspannung und Systemdruck zu bilden. Es unterstützt auch die Dampfkeimbildung nur insofern, als die wenigen in der sehr kleinen verdampfenden Natriummenge gelösten Argonatome freigesetzt werden. Weiteres Argon muß durch Diffusion an die neugeschaffene Oberfläche und in die Blase gelangen. Die Zeitkonstante dieses Vorganges beträgt jedoch ein vielfaches der Bildungszeit einer Dampfblase in überhitzter Flüssigkeit.

Der Argonpartialdruck wird also erst wirksam, wenn entsprechend große Mengen Natrium verdampft werden. Dies geschieht aber lange nach Abbau des zur ersten Keimbildung erforderlichen Siedeverzuges. Wie Abb. 28 zeigt, konnte demnach experimentell auch kein Einfluß von gelöstem Gas auf den Siedeverzug festgestellt werden.

Eine weitere Möglichkeit der Gasfreisetzung könnte durch Ausdiffundieren aus der festen Wand vor sich gehen [59, 60]. Jedoch ist das Verhältnis des Diffusionskoeffizienten von Gasen in festen Metallwänden zu dem im Flüssigmetall Natrium sehr klein. Ausdiffundierendes Gas wird dann sofort mit größerer Geschwindigkeit dem Konzentrationsgradienten in das Natrium hinein folgen und auch in besonders geformten Höhlungen (z.B. Abb. 37) nicht solange in der Grenzschicht verweilen, bis sich ein Gaspolster mit freier Flüssigkeitsoberfläche bilden kann. Zudem erfordert auch diese Blasenbildung einen der Oberflächenspannung entsprechenden Gasdruck und damit größere Gasmengen als aus dem Produkt von Diffusionsrate und Verweilzeit in derartigen Systemen zur Verfügung stehen.

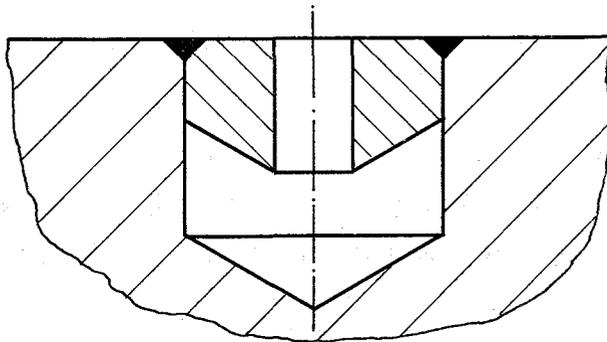


Abb. 37: Innen aufgeweitete Höhlung ("Re-entry-Cavity")

An nicht mit künstlichen Höhlungen versehenen Wärmeübertragungsflächen ist es jedoch denkbar, daß im Verlauf des Korrosionsprozesses ein mit Gas gefüllter Mikrohohlraum im Wandmaterial plötzlich geöffnet wird. Das austretende Gas könnte dann durchaus eine auslösende Wirkung auf den Siedeprozess haben. Es könnte z.B. zu jener Art von flachen Keimen führen, wie sie unter 6.3 diskutiert werden, die dann bis zur kritischen Größe anwachsen können.

Dieser Prozeß ist aber sicher nicht systematisch und die Wahrscheinlichkeit, daß er sich mit reproduzierbarer Konstanz am Boden einer künstlichen Höhlung abspielt, geht beliebig weit gegen Null.

Der überwiegende Teil der hier behandelten Versuche wurde mit sehr gut entgastem Natrium und auch mit gut ausgeheizter und evakuierter Teststrecke vor dem Einfüllen des Flüssigmetalls und an makroskopischen Höhlungen durchgeführt. Es kann daher eine systematische Siedekeimbildung aus Gasresten auf Grund der oben diskutierten Mechanismen mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden.

## 6.2 Keimbildung in Oberflächenschichten (1. und 2. Hypothese)

Einen wesentlichen Anteil der experimentellen Untersuchungen dieser Arbeit bilden die Versuche zum Einfluß des Wandmaterials und des Verunreinigungsgrades des Natriums auf den Siedeverzug. Die maßgebende Komponente der Verunreinigungen ist das Natriumoxid  $\text{Na}_2\text{O}$ , alle anderen Substanzen liegen bei den verwendeten Reinigungsverfahren entweder in weit geringeren Konzentrationen vor oder werden gasförmig abgeschieden und in das Vakuumsystem abgesaugt.

Die wichtigsten Ergebnisse der Versuche (vgl. Kap. 5) sind:

- Der Siedeverzug ist sowohl vom Wandmaterial als auch von der Konzentration des  $\text{Na}_2\text{O}$  abhängig.
- Bei rostfreiem Stahl und bei Chrom als Wandmaterial hat der Siedeverzug ein typisches Maximum bei Kaltfallentemperaturen um  $127^\circ\text{C}$  (entsprechend ca. 2 ppm  $\text{Na}_2\text{O}$ , nach [46]). Dieses Maximum tritt bei Reineisen und Nickel nicht auf (vgl. Abb. 26).

- Reineisen ergab generell einen niedrigen Siedeverzug, der nicht vom Oxidgehalt beeinflusst wurde. Bei Nickel fällt der Siedeverzug mit steigendem Oxidgehalt vom Wert für heißfallenreines Natrium auf den gleichen unteren Grenzwert, der sich auch bei Stahl einstellte. Der Grenzwert liegt bei einem Drittel des theoretisch errechneten Siedeverzuges.

Von Benetzungsuntersuchungen [24, 25, 56] ist bereits ein Einfluß von Oberflächenbelägen bekannt und das Korrosionsverhalten von Stählen in Natrium wird u.a. mit einem Mehrschichtenmodell behandelt [21], dessen Feinstruktur mit dem Sauerstoffgehalt des Natriums veränderlich zu sein scheint. Ein (möglicher) Schichtenaufbau zwischen festem und flüssigem Metall würde von der Schicht der Korrosionsprodukte ausgehend zur Flüssigkeit und zur festen Wand hin jeweils noch Zwischenschichten beinhalten, in denen sich Diffusions- und Legierungsvorgänge abspielen. Die eigentliche Reaktionsrate wird durch die Dicke dieser Schichten und die örtliche Konzentration bestimmt. Auf Grund der bisherigen Kenntnisse war es nicht sehr erstaunlich, daß schon die ersten Übersichtsversuche (vgl. Abb. 21 und 22) einen klar erkennbaren Einfluß der  $\text{Na}_2\text{O}$ -Konzentration - repräsentiert durch die Kaltfallentemperatur - auf den Siedeverzug an Stahloberflächen zeigten. Zwei deutliche Merkmale wiesen diese noch groben Ergebnisse auf:

- der Einfluß des Oxidgehaltes hat zwischen  $100^\circ\text{C}$  und  $165^\circ\text{C}$  ein Maximum
- bei kleineren Höhlungsdurchmessern ( $\sim$  Diffusionsquerschnitt) ist der Einfluß in Form von klar getrennten Bereichen besser erkennbar.

Dies deutete bereits darauf hin, daß Anreicherungsverfahren, erschwerte Diffusion und verhinderte Naturkonvektion in der Höhlung, die alle die Korrosionsschichten fördern, den Siedeverzug beeinflussen.

Außerdem zeigte sich wie bei den Versuchen mit heißfallengereinigtem Natrium eine gute Übereinstimmung mit dem Verlauf der Kurven für konstante kritische Keimradien. Darauf wird in diesem Abschnitt und unter 6.3 noch zurückzukommen sein.

Die genauere Untersuchung mit der Testfläche Nr. 3 brachte die Bestätigung für das erstgenannte Merkmal (Abb. 24). Bei etwa 127°C Kaltfallentemperatur ergibt sich ein maximaler Siedeverzug, der auch deutlich aus der Fehlerbandbreite (vgl. 4.4) herausragt. Auf Grund dieser Ergebnisse wurde eine 1. Hypothese aufgestellt:

Der Siedeverzug und damit die Keimbildungsvorgänge bei Siedeprozessen werden durch den Oxidgehalt, den Korrosionsprozeß und eine Korrosionsschichtenbildung beeinflusst.

Weitere Aufklärung dieses Verhaltens sollte die Untersuchung der Hauptkomponenten des Stahls Ni, Fe und Cr bringen. Hinweise auf ein unterschiedliches Verhalten geben schon die freien Bildungsenthalpien der jeweiligen Oxide. Insbesondere die relative Lage zum Natriumoxid ist dabei von Bedeutung. Die Abbildungen 38a und 38b zeigen die Bildungsenthalpien für einige Metalloxide und Doppeloxyde, die Natrium enthalten. Nickel und Eisen müßten sich demnach etwa gleichartig verhalten, während Chrom, dessen Oxid mit seiner Bildungsenthalpie den Bereich des Natriumoxids kreuzt, andere Ergebnisse liefern sollte. Gleiches gilt auch für Doppeloxyde, insbesondere für  $\text{NaCrO}_2$ , welches bereits als dunkle Substanz auf flüssigem Natrium ausgesetztem chromhaltigen Material gefunden wurde [22].

Wenn man davon ausgeht, daß eine Veränderung im Grenzschichtbereich zu entsprechenden Einflüssen auf die Dampfkeimbildung führt, z.B. durch einen Abbau der Bindungskräfte und damit der Benetzungsfähigkeit, so darf neben den komplizierteren Korrosionsreaktionen die einfache Lösung des Wandmetalls in der Flüssigkeit nicht vergessen werden.

Vor allem beim Reineisen sind die konstant niedrigen Siedeverzugswerte auch bei heißfallenreinem Natrium schlecht anders als mit der höheren Löslichkeit [63] zu erklären. Der geringe Gehalt an Al und Mn (vgl. Tabelle 4) scheint keine Bedeutung zu haben, auch wenn es sich bei diesen Metallen um gute, d.h. in Natrium stabile Oxidbildner handelt. Jedoch müßten sie in gleicher Weise auch bei den untersuchten Stählen wirksam werden. Widersprüchlich scheint dabei allerdings das optische Bild der durch die Versuche kaum veränderten Fe-Fläche im Vergleich zur

starkkorrodierten Nickelfläche zu sein. Die Abhängigkeit der Ni-Korrosion und Lösung von Temperatur und Oxidgehalt im Natrium ist aber noch weitgehend ungeklärt und weist zunächst von der reinen Lösung stark abweichende, zum Teil sehr hohe Werte auf [62], was hier nur bestätigt werden kann.

Der mit steigendem Oxidgehalt sinkende Siedeverzug für Nickel ist folgerichtig, wenn eine steigende Korrosionsrate auch die Siedekeimbildung erleichtert. Wie Abb. 36c erkennen läßt, können oberflächennah gebildete poröse Schichten, in denen sich möglicherweise Anlagerungen anderer im Kreislauf vorhandener Metalle finden (dunkler Bereich), ebenfalls dazu beitragen.

Die Chromtestfläche ergab nicht, wie aus den Bildungsenthalpien für Oxide erwartet wurde, irgendwelche anderen Ergebnisse, sondern die Chromwerte für den Siedeverzug folgen denen von Stahl praktisch genau. Betrachtet man alle Ergebnisse in Abb. 26 gemeinsam, so kann man sagen, daß bei höheren Oxidgehalten und folglich höheren Korrosionsraten alle untersuchten Wandmaterialien in das gleiche niedrige Niveau münden. Bis auf Eisen beginnen sie auch bei niedrigen Kaltfallentemperaturen und für heißfallenreines Natrium bei fast gleichen Werten. Dazwischen weichen nur die chromhaltigen Materialien zu einem Maximalwert für den Siedeverzug ab.

Erst eine neuere Arbeit über das Verhalten des Na-Cr-O-Systems [61] liefert einen brauchbaren Anhaltspunkt für den Grund dieses Maximums. In [61] wurden neue Meßwerte für die Bildungsenthalpie von  $\text{NaCrO}_2$  zwischen  $300^\circ\text{C}$  und  $500^\circ\text{C}$  angegeben. Die Werte wurden extrapoliert und als schraffierter Bereich in Abb. 38b eingetragen. Danach liegt die Gleichgewichtskonzentration mit  $\text{Na}_2\text{O}$  bei  $700^\circ\text{C}$  etwa zwischen 7 und 20 ppm. Außerdem gibt es Anzeichen dafür, daß die Chromaktivität bei Cr-Überschuß die Gleichgewichtskonzentration erniedrigt. Cr-Überschuß ist aber bei der Chromtestfläche und während der Anlaufphase auch bei Stahl vorhanden [22], so daß eine Gleichgewichtslage um 2 ppm und niedriger durchaus möglich erscheint. In diesem Bereich liegt aber auch das Maximum des Siedeverzuges.

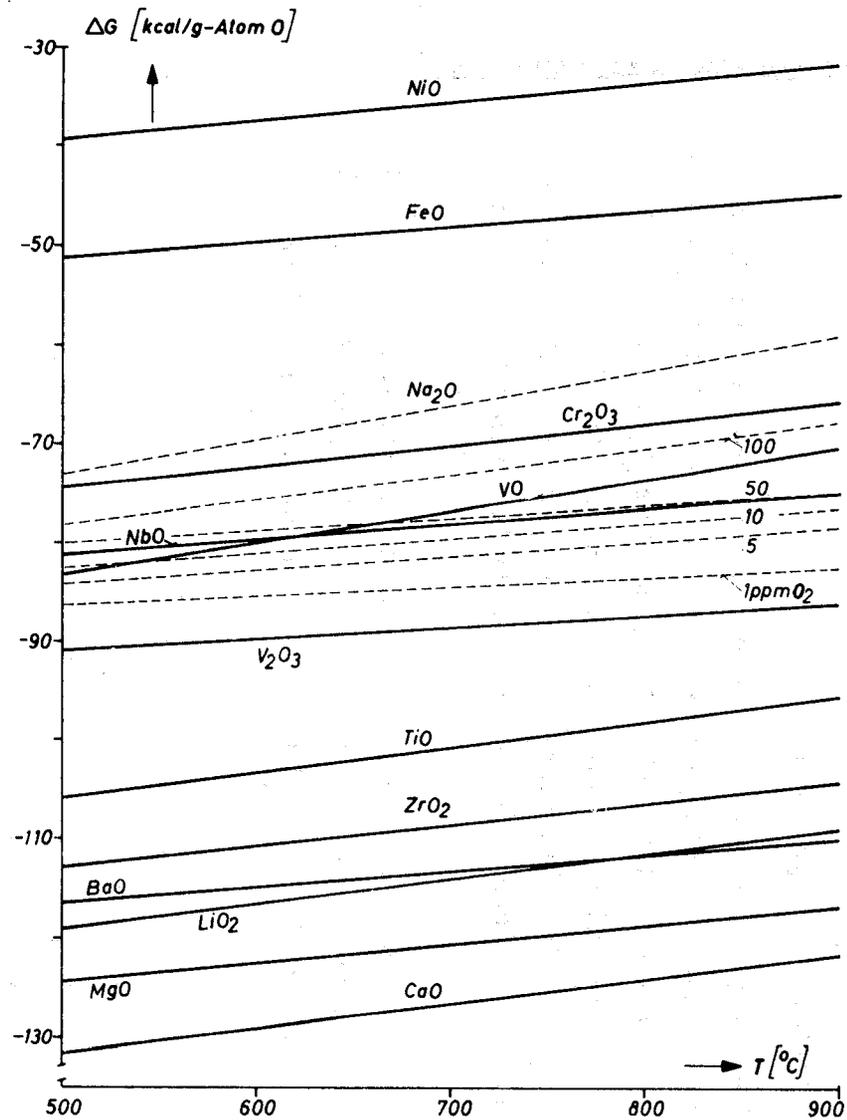


Abb. 38a Freie Bildungsenthalpie von Metalloxiden [21,62]

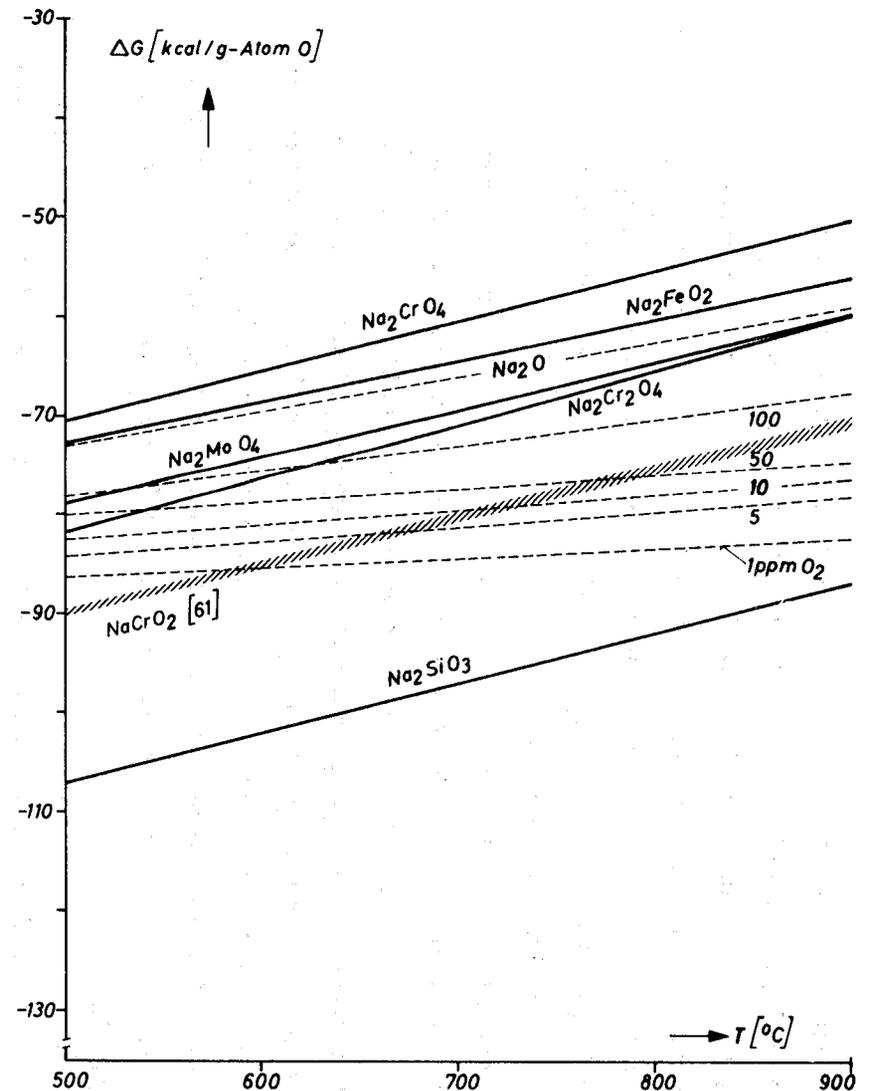


Abb. 38b Freie Bildungsenthalpie von Doppeloxiden mit Natrium [61,62]

Diese Übereinstimmung darf allerdings nicht zu streng betrachtet werden. Infolge der Ungenauigkeiten bei der Bestimmung der Löslichkeit von  $\text{Na}_2\text{O}$  [46, 65, 66] in flüssigem Natrium können weitere Verschiebungen zwischen der Kurvenschar für verschiedene  $\text{Na}_2\text{O}$ -Konzentration und dem  $\text{NaCrO}_2$ -Bereich auftreten. Aus [24] kann z.B. eine gute Übereinstimmung zwischen 1 ppm und 5 ppm  $\text{Na}_2\text{O}$  abgelesen werden, während die in Abb. 38b gezeigten Werte deutliche Abweichungen zeigen.

Hinzu kommt, daß die Löslichkeiten für Gleichgewichte in der freien Flüssigkeit gelten. In der Nähe von festen Wänden und da besonders in Höhlungen treten jedoch auf Grund der veränderten Aktivitäten der beteiligten Stoffe Abweichungen von der Gleichgewichtslage auf, die zu Anreicherungen des gelösten  $\text{Na}_2\text{O}$  führen. Der Wärmeübertragungsprozeß verstärkt diesen Wandeinfluß noch. Genauere Aussagen über diese Effekte und eine quantitative Angabe der Konzentrationsverschiebung sind jedoch mit den heutigen Kenntnissen in so kompliziertem System, wie dem untersuchten, nicht möglich.

Auf die genannten Gleichgewichtslagen, bei denen Chromoxid z.B. bei weiterer Reinigung des Natriums von  $\text{Na}_2\text{O}$  seinen Sauerstoff abgibt und damit einen Haltepunkt in der Sauerstoffkonzentration erbringt, wiesen bereits Untersuchungen mit Meßsonden zur  $\text{O}_2$ -Messung in Natrium hin [35, 64]. Auch die Reversibilität dieses Vorganges wird dabei erwähnt.

So ergibt sich als 2. Hypothese:

Auf Grund der Ergebnisse muß angenommen werden, daß in der Nähe der Gleichgewichtslage über die praktisch gleichwertige Affinität von Cr und Na zum Sauerstoff eine zusätzliche, der Chemisorption ähnliche Bindung die Haft- und Benetzungskräfte in der Grenzschicht zu unterstützen scheint. Die Überwindung dieser Haftkräfte erfordert bei der Keimbildung einen höheren Dampfdruck und damit einen größeren Siedeverzug.

Weicht die  $\text{Na}_2\text{O}$ -Konzentration von der Gleichgewichtslage ab, so werden diese Kräfte schwächer und Lösungs- und Korrosionsprozesse übernehmen in immer stärkerem Maße ihre die Keimbildung erleichternde Funktion.

Nachdem der Korrosionsmechanismus die Aufstellung einer Hypothese zur Erklärung des Maximums bei chromhaltigem Wandmaterial bietet, ist noch die Frage zu behandeln, warum bei diesen Versuchen keine grundsätzlich höheren Siedeverzüge als die den Höhlungsabmessungen entsprechenden gemessen wurden. Im Zusammenhang mit der nachfolgenden Betrachtung wird darauf in Abschnitt 6.3 genauer eingegangen.

Zunächst sollen noch andere Ergebnisse verschiedener Experimentatoren, die den Siedeverzug von Natrium betreffen, einer vergleichenden Betrachtung unterzogen werden.

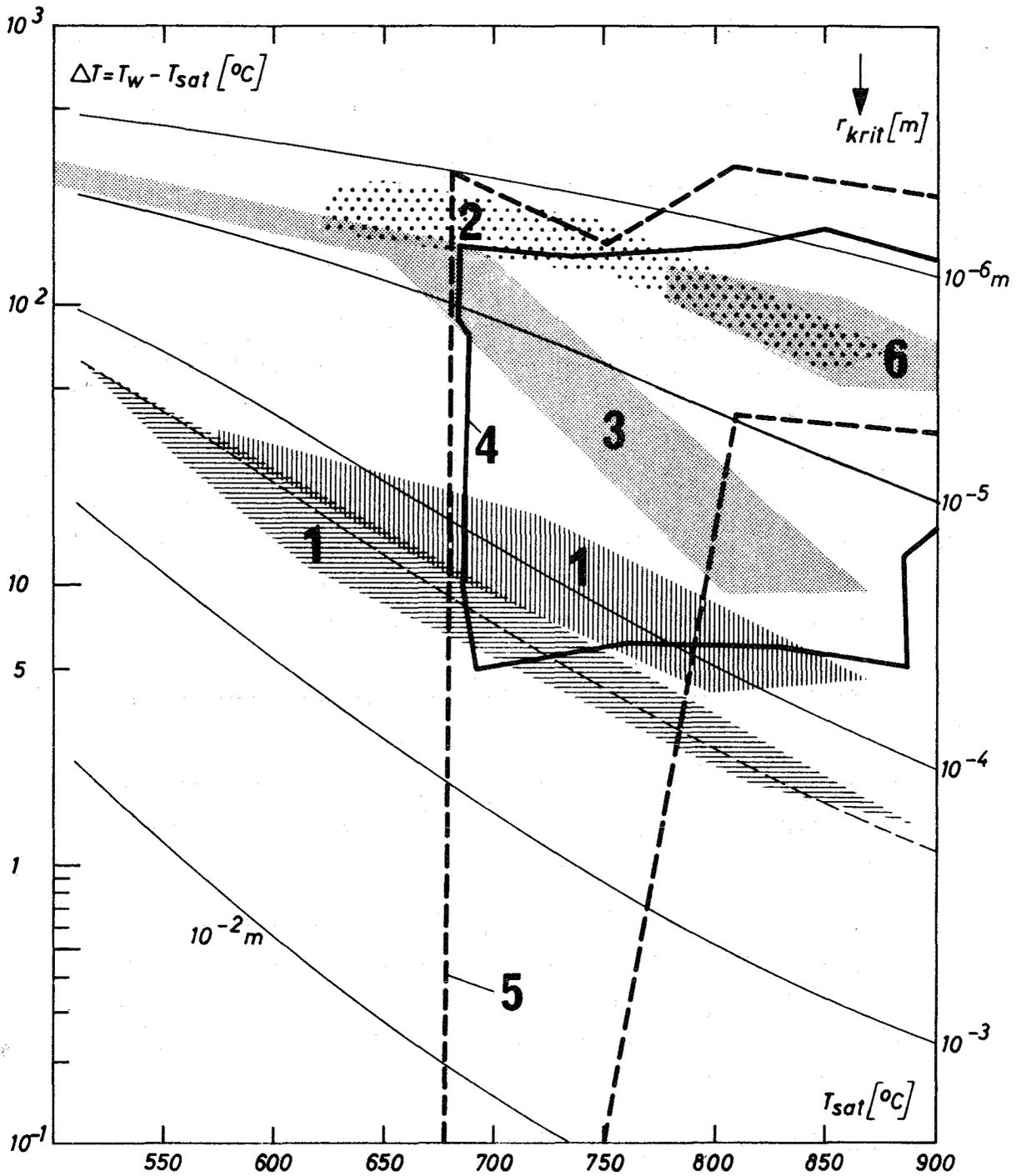
In Abb. 39 sind die gemessenen Siedeverzugswerte in Form von flächigen Bereichen - um die Streuung mit anzudeuten - in einem halblogarithmischen Diagramm über der Siedetemperatur aufgetragen. Das Schaubild enthält ebenfalls Kurven mit konstantem kritischen Keimradius, wie sie im Verlauf dieser Arbeit bereits benutzt wurden (vgl. 4.3).

Es ist auffallend, daß es zwei unterschiedliche Typen von Ergebnissfeldern gibt:

- Der eine, die Felder Nr. 4 und 5, liegt breit über einem großen Keimradienbereich, ohne irgendwelche Annäherung an den Verlauf der Kurvenschar  $r_{krit} = konst.$
- Der andere Typ, die Felder 1 bis 3 und 6, weist zunächst eine weit geringere Streubreite auf und folgt außerdem recht gut dem Verlauf von bestimmten  $r_{krit} = konst.$  Kurven. Ein ähnlicher Unterschied besteht auch in Abb. 20 zwischen den Ergebnissen von Testfläche 10 und allen anderen Meßwerten.

Eine genauere Untersuchung der Versuchsapparaturen und Prozeduren bei den einzelnen Experimenten ergab folgende besonderen Kennzeichen:

- (A) Höhlungen irgendeiner Art werden als Keimzentren angeboten.
- (B) Naturkonvektionseinflüsse sind weitgehend unterdrückt.
- (C) Naturkonvektion ist in starkem Maß auf Grund großer Abmessungen und Temperaturunterschiede möglich.



**Abb. 39** Vergleich von Meßergebnissen für den Siedeverzug von Natrium

- 1 - eigene Ergebnisse (vgl. Abb. 19)
- 2 - [51]
- 3 - [52]
- 4 - [14]
- 5 - [53]
- 6 - eigene Ergebnisse [54]

- (D) Es wurden technisch glatte Oberflächen verwendet, deren Rauigkeitsradien ungefähr in der Größenordnung zwischen 1  $\mu\text{m}$  und 10  $\mu\text{m}$  liegen. Dieser Abmessungsbereich ist auch aus Versuchen mit Wasser und organischen Flüssigkeiten bekannt [68].

Da die Wärme immer durch eine feste Wand an das Natrium übertragen wird, erscheint in diesem Zusammenhang die Art der Wärmequelle nicht von Bedeutung zu sein.

Auf die in Abb. 39 gezeigten Ergebnisfelder verteilen sich die Kennzeichen in folgender Weise:

Feld 1:	(A), (B) - -
Feld 2:	- (B) - (D)
Feld 3:	(A), (B) - -
Feld 4:	- - (C),(D)
Feld 5:	- - (C),(D)
Feld 6:	(A), - (C) -

Folgende Aussagen scheinen auf Grund dieser Auflistung zulässig zu sein:

- Massenaustausch und damit Abtransport von Korrosionsprodukten aus den Oberflächenschichten und Temperaturschwankungen erhöhen die Streuung des Siedeverzuges außerordentlich
- Oberflächenrauigkeiten und Höhlungen begrenzen auch bei Flüssigmetallen den Siedeverzug
- wird zusätzlich der verstärkte Massenaustausch bei Konvektionerscheinungen vermieden, tritt eine weitere Einschränkung des Streubereichs des Siedeverzuges ein
- dies trifft auch zu, wenn es sich um normale technisch glatte Oberflächen handelt, das Gesamtniveau liegt höher entsprechend den kleineren Höhlungsradien.

Daraus folgt, daß sowohl den thermohydraulischen wie auch den physikalisch-chemischen Bedingungen, unter denen Versuche zur Ermittlung des Siedeverzugs durchgeführt werden, erheblich mehr Beachtung zukommen muß,

wenn auch nur einigermaßen vergleichbare experimentelle Ergebnisse erzielt werden sollen.

### 6.3 Theoretische Erwägung eines Flächenkeimes (3. Hypothese)

Im vorhergehenden Abschnitt wurde schon die zunächst zu diskutierende Frage gestellt, warum der Siedeverzug bei den in dieser Arbeit gemachten Experimenten keine extrem hohen Werte annimmt. Er hält sich, wie die graphischen Darstellungen in Kap. 5 zeigen, immer im Bereich der rechnerisch für die entsprechenden Bohrungsdurchmesser ermittelten Werte.

Da die Temperaturen im ganzen Testbehälter sorgfältig gemessen und registriert wurden, kann für den Testbereich gesagt werden, daß auch an anderen Stellen die wesentlich höheren Temperaturen nicht herrschten, die zur Aktivierung kleinster Keime benötigt werden (vgl. Abb. 39). Korngrenzenrisse und Mikrokavitäten scheiden also aus energetischen Gründen aus, wenn davon ausgegangen wird, daß ein Keim von Anfang an in halbkugelähnlicher Form wächst.

Dafür gilt auch bei wenigen  $\mu\text{m}$  Durchmesser noch die makroskopisch definierte Oberflächenspannung  $[\sigma]$  und folglich auch die Gleichgewichtsbedingung für die an der Grenzfläche angreifenden Kräfte (Gl. (7)). Unter der Annahme, daß dieses Gleichgewicht generell für makroskopische Blasen gültig ist, liegt es nahe anzunehmen, daß die Keimbildung nicht von kleinen mittleren Keimradien aus ihren Ursprung nimmt. Dazu fehlen die für den erforderlichen hohen Dampfdruck nötigen Systemtemperaturen. Die vorhandenen niedrigen Dampfdrücke verlangen entsprechend große mittlere Keimradien.

Nachfolgend soll deshalb ein Modell diskutiert werden, das auf der 3. Hypothese beruht:

Der Dampfkeim entsteht aus einer Fläche und startet so mit einem großen endlichen mittleren Krümmungsradius.

Mit diesem Modell kann der erforderliche Dampfdruck zum Keimwachstum mit den geometrischen Verhältnissen der festen Begrenzungen verknüpft werden,

z.B. an der Wand einer Bohrung. Dort erreicht die Blase eine kritische Phase in ihrem Wachstum, in der ein ausreichend großer Dampfdruck nötig ist, um den Keim mit dem dann kleineren Krümmungsradius gegen die äußeren Kräfte unter Berücksichtigung des Benetzungsverhaltens an der Wand stabil zu halten.

Unter diesen Annahmen ist auch die Auswertung der Meßergebnisse hinsichtlich eines wahrscheinlichen Kontaktwinkels an der Höhlungswand (vgl. Abb. 27) nicht völlig unsinnig, auch wenn nicht mit Sicherheit ausgeschlossen werden kann, daß die Oberflächenspannung durch die Korrosionsprodukte beeinflußt wird.

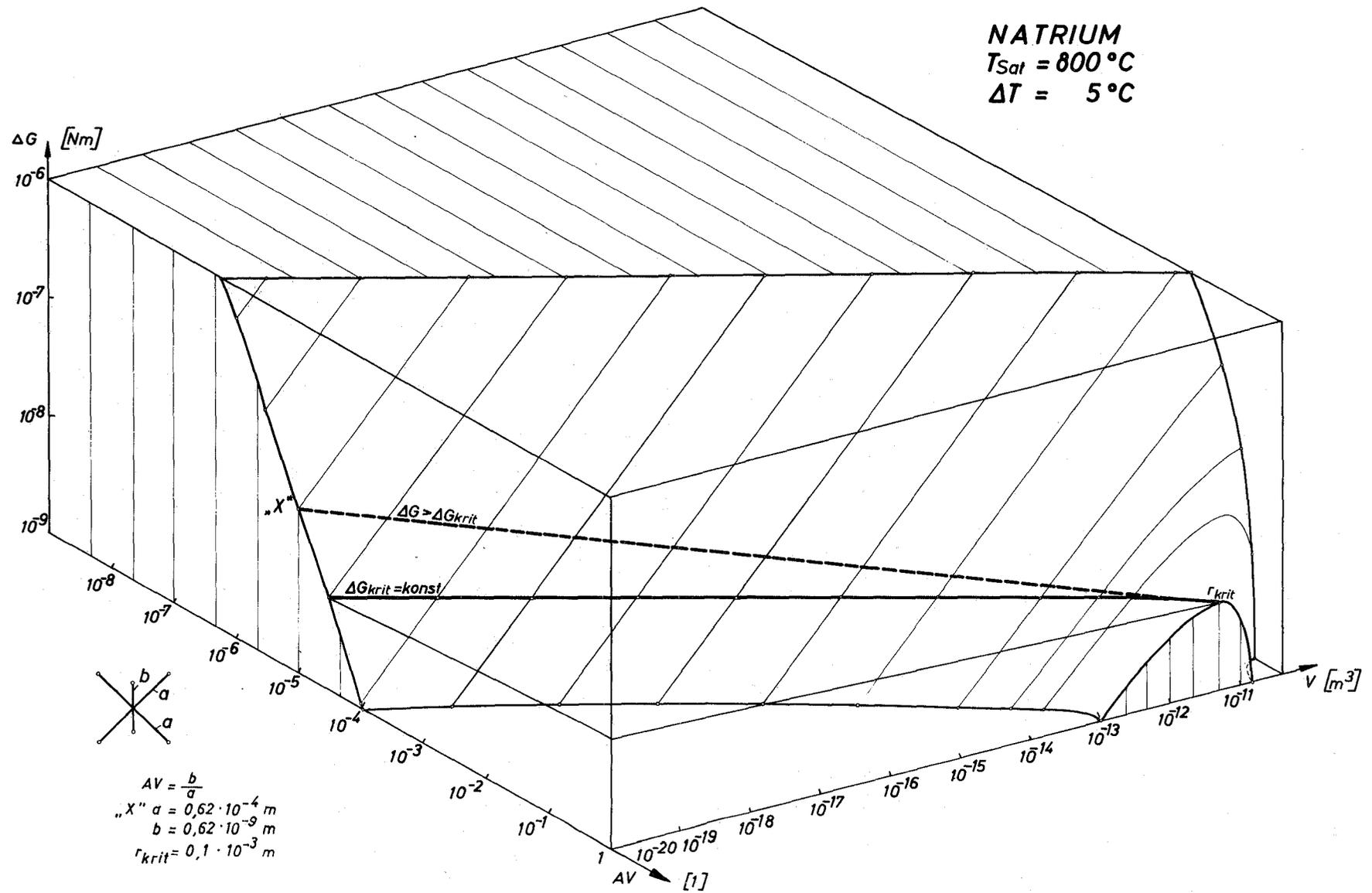
Eine weitere Anregung zu diesem Modell bietet der Korrosionsmechanismus. Bei durch Konvektion weitgehend ungestörten Verhältnissen wird seine Kinetik im wesentlichen durch Diffusions- und Eddidiffusionsprozesse bestimmt, die sich in verschiedenen Schichten des Grenzflächenbereiches abspielen. In diesen Schichten kann nicht ausgeschlossen werden, daß sich die Trennarbeit für die Bildung neuer Oberflächen parallel zur Reaktionsfläche an Kristallen so weit erniedrigt, daß durch

Flüssigkeitsdampfdruck und  
chemische Reaktionsenergie

gemeinsam die Trennung bewerkstelligt werden könnte.

Die Frage der energetischen Verhältnisse beim Wachsen eines rotationselliptischen, flachen Keimes bis zu einem kugelförmigen kritischen Keim wurde an einem Beispiel genauer untersucht. Für Natrium mit einer Sättigungstemperatur von  $T_{\text{sat}} = 800^{\circ}\text{C}$  wurde für einen Siedeverzug  $\Delta T = 5^{\circ}\text{C}$  die freie Bildungsenthalpie  $\Delta G$  für Keime verschiedener Form nach Gl.(2) berechnet. In Abhängigkeit vom Volumen  $V$  und dem Achsenverhältnis  $AV$  für Rotationsellipsoide wurde die Fläche für  $\Delta G$  in Abb. 40 dargestellt. Dabei entspricht  $AV = 1$  der Kugelform, deren kritischer Radius bei 0,1 mm liegt (vgl. z.B. Abb. 20). Die Fläche für  $\Delta G$  ist sattelförmig mit dem Sattelpunkt bei  $AV = 1$  und  $V_{\text{krit}} (r_{\text{krit}})$ .

Die Schnittlinie der Ebene  $\Delta G_{\text{krit}} = \text{konst.}$  mit dieser Sattelfläche ist ebenfalls in Abb. 40 eingezeichnet. Darüber ist ein möglicher Weg angedeutet, über den eine Dampfblase mit  $V = 10^{-21} \text{ m}^3$  und  $AV = 10^{-5}$  unter



**Abb. 40** Bildungsarbeit für ellipsoide Dampfkeime in Natrium

ständiger Abnahme von  $\Delta G$  bis zum kritischen Wert anwachsen kann. Der größte Radius für den Ausgangspunkt "X" liegt bei etwa 60  $\mu\text{m}$ .

Der Verlauf der gezeigten Kurven läßt erkennen, daß auch bei noch kleineren Abmessungen und damit geringeren Volumina ein Weg mit abnehmender Bildungsenthalpie bei wachsender Blase zum kritischen Keim hin möglich ist.

Der angegebene Wert für  $\Delta G_{\text{krit}}$  von etwa  $5 \cdot 10^{-9}$  Nm muß bei sehr kleinem Volumen bei der Bildung einer Grenzfläche überschritten werden. Eine grobe Abschätzung der frei werdenden Reaktionsenergie möglicher chemischer Reaktionen, z.B. im System Na-Cr-O, wo mit einigen kcal/g-Atom O zu rechnen ist (vgl. Abb. 38a, b), ergibt, daß durchaus nennenswerte Anteile des Energiebedarfs aus der chemischen Reaktion gedeckt werden könnten. Die kritischen Größen dabei sind die Dichte der Sauerstoffbelegung der Oberfläche und die Reaktionsrate. Die in den Prozeß einbezogenen Flächen sind natürlich von großer Bedeutung dafür, ob tatsächlich wesentliche Energiemengen geliefert werden, die nicht gleich durch Wärmeleitung in die Flüssigkeit abtransportiert werden.

Das hier erwogene Modell eines Flächenkeimes als Ursprung einer Dampfblase bei Siedevorgängen an festen Wänden mag viele Aspekte haben, die es unwahrscheinlich erscheinen lassen, jedoch im Zusammenhang mit den Korrosionsprozessen gewinnt es doch einen gewissen Sinn. Als Vorteil muß vor allem angesehen werden, daß es keinen latenten Inaktivierungsmechanismus enthält, wie die Gasrestmodelle. Bei den hier durchgeführten Versuchen mit flüssigem Natrium wurden ja auch, etwas überraschend zwar, keine Inaktivierungserscheinungen festgestellt. Auch nach monatelangem Betrieb, Dauersieden und Druckaufgabe "arbeiteten" die künstlichen Siedezentren einwandfrei.

#### 6.4 Hinweise für weitere Untersuchungen

Nachdem die Ergebnisse dieser Arbeit recht eindeutig auf die Zusammenhänge zwischen Korrosionsvorgängen und der Keimbildung bei Siedeprozessen weisen, erscheint es zunächst erforderlich, noch einige spezielle Experimente in dieser Richtung zu machen.

Die Metalle Molybdän und Vanadium scheinen geeignet, bei weiteren Versuchen der hier beschriebenen Art noch zusätzliche Aufschlüsse zu liefern. Insbesondere Vanadium als Sauerstoffabsorber wird dabei interessant sein.

Versuche mit strömender Flüssigkeit und flachen Höhlungen, aus denen Korrosionsprodukte dann durch verstärkte Turbulenz besser abtransportiert werden, bringen sicher eine weitere Klärung zur 1. aufgestellten Hypothese.

Die 2. Hypothese läßt sich möglicherweise bereits durch eine Verschiebung der Sättigungstemperatur zu Werten um  $800^{\circ}\text{C}$  untersuchen bei Versuchen, wie sie in Abb. 12b dargestellt sind. Das Maximum müßte sich dann zu höheren Kaltfallentemperaturen hin verschieben.

So schwierig die experimentelle Ausführung sein wird, dürften jedoch Benetzungsuntersuchungen mit Metallen und Metalloxiden eine sinnvolle Ergänzung sein. Möglicherweise lassen sich dabei genauere Kenntnisse über die Grenzflächenverhältnisse gewinnen, die bei der theoretischen Behandlung der Siedekeimbildung dringend benötigt werden.

Wenn die energetischen Verhältnisse in der Grenzflächenschicht auch nur annähernd erfaßt werden sollen, um die bisherigen großen Unterschiede zwischen Theorie und Praxis zu überwinden, so ist eine genauere Kenntnis der Korrosionsmechanismen unumgänglich. Die Einbeziehung der Ergebnisse der Werkstoff- und Korrosionsforschung und der ständige Kontakt mit den dort arbeitenden Spezialisten erscheint auch für eine theoretische Behandlung der Keimbildungsprobleme mit den Methoden der physikalischen Chemie eine zwingende Notwendigkeit.

Möglicherweise gelingt es, über die Vorgänge beim Sieden von Flüssigmetallen einige allgemeingültigen Kenntnisse über Keimbildungsprozesse zu gewinnen, da doch relativ "saubere" Bedingungen eingestellt werden können, wenn die entsprechenden technologischen Voraussetzungen dafür geschaffen werden.

Im Zusammenhang mit Sicherheitsfragen von natriumgekühlten schnellen Brutreaktoren haben sich die Schwerpunkte der Untersuchungen im Verlaufe der Durchführung dieser Arbeit etwas verschoben [7, 67].

So sind jetzt zwar noch Kenntnisse über den Siedeverzug erwünscht, jedoch haben sie an Bedeutung verloren gegenüber Fragestellungen zu lokalen Kühlungsstörungen oder der Brennstoff-Natrium-Wechselwirkung.

7. Nomenklatur

AV	$[^{-1}]$	Achsenverhältnis (vgl. Abb. 40)
C	$[^{-ppm}]$	Konzentration
D	$[^{-mm}]$	Durchmesser der künstlichen Höhlung
$\Delta F$	$[^{-m^2}]$	Oberfläche
$\Delta G$	$[^{-kcal/g-Atom O}]$ $[^{-Nm}]$	freie Bildungsenthalpie
H	$[^{-mm}]$	Tiefe der künstlichen Höhlung
$\Delta h$	$[^{-kJ/kg}]$	Verdampfungsenthalpieänderung
J	$[^{-1/cm^3s}]$	Keimbildungsrate
KFT	$[^{-^{\circ}C}]$	Kaltfallentemperatur
k	$[^{-Nm/K}]$	Boltzmann Konstante
L	$[^{-mm}]$	Länge, Abstand
m	$[^{-1}]$	Zahl der Moleküle im kritischen Keim
p	$[^{-kp/cm^2}]$ , $[^{-Nm^2}]$	Druck
ppm		parts per million, Konzentrationsdimension
RQ	$[^{-m}]$	mittlerer Blasenradius
r	$[^{-m}]$	Blasenradius
T	$[^{-^{\circ}C}]$ , $[^{-K}]$	Temperatur
TB	$[^{-^{\circ}C}]$	Bodentemperatur in der Höhlung
TS	$[^{-^{\circ}C}]$	Siedetemperatur am Höhlungsgrund
$\Delta T$	$[^{-^{\circ}C}]$	Siedeverzug
V	$[^{-m^3}]$	Volumen

$W_n$	$[^-Nm^-]$	Bildungsenergie des Keimes mit n Molekülen
$Z_1$	$[^-1/s\ cm^3^-]$	Kollisionskonstante
$\delta(x)$	$[^-Dim.x^-]$	Fehler der Größe x
$\theta$	$[^-Grad^-]$	Benetzungswinkel
$\lambda$	$[^-Nm^-]$	molekulare Verdampfungswärme
$\rho$	$[^-kg/cm^3^-]$	Dichte
$\sigma$	$[^-dyn/cm^-]$	Oberflächenspannung

Indizes

d	dampfförmiger Zustand
f	fester Zustand
fl	flüssiger Zustand
g	gasförmiger Zustand
krit	kritischer Keimzustand
$Na_2O$	$Na_2O$ betreffend
n	Keim mit n Molekülen Inhalt
sat	Sättigungswert
w	an der Wand

Alle in Rechenprogrammen verwendeten Bezeichnungen sind im Anhang bei den im Text genannten Programmen erläutert.

8. Literaturverzeichnis

- [1] Volmer, M., Weber, A., Z. Phys. Chem. 119 (1925), 277
- [2] Becker, R., Döring, W., Ann. Phys. [5] 24 (1935), 719
- [3] Tolman, R.C., The Effect of Droplet Size on Surface Tension,  
J. chem. Phys., Vol. 17, No. 3, 1949, pp. 333-337
- [4] Kirkwood, I.G., Buff, F.P., The Statistical Mechanical Theory  
of Surface Tension  
J. chem. Phys., Vol. 17, No. 3, 1949, pp. 338-343
- [5] Turnbull, D., Kinetics of Heterogeneous Nucleation,  
J. chem. Phys., Vol. 18, No. 2, 1950, pp. 198-203
- [6] La Mer, V.K., Nucleations in Phase Transitions,  
Ind. Eng. Chem., Vol. 44, No. 6, 1952, pp. 1270-1277
- [7] Schlechtendahl, E.G., Sieden des Kühlmittels in natrium-  
gekühlten schnellen Reaktoren  
KFK 1020, EUR 4302 d, Juni 1969
- [8] Wismer, K.L.,  
J. phys. Chem. 26 (1922), 301
- [9] Bankoff, S.G., Entrapment of Gas in the Spreading of a Liquid  
over a Rough Surface  
A.I. Ch. E. J. 4, März 1958, pp. 24-26
- [10] Stefan, K., Beitrag zur Thermodynamik des Wärmeüberganges  
beim Sieden,  
Abhandl. d. Deutsch. Kältetechn. Vereins, Nr. 18,  
Verlag C.F. Müller, Karlsruhe (1964)
- [11] Defay, R., Prigogine, I., Bellemans, A., Everett, D.H.,  
Surface Tension and Adsorption,  
Longmans, Green + Co, London, 1966

- [12] Pee, A., Stoffdaten von Natrium,  
KFK 924, EUR 4168 d, Feb. 1969
- [13] Gast, K., Lokale Kühlungsstörungen im Kern schneller  
natriumgekühlter Reaktoren  
(Veröffentlichung in Vorbereitung)
- [14] Fauske, H.K., Superheating of Liquid Metals in Relation  
to Fast Reactor Safety, Reactor Fuel Processing and  
Technology, Vol. 11, No. 2, 1968, pp. 84-88
- [15] Claxton, K.T., The Influence of Radiation on the Inception of  
Boiling in Liquid Sodium,  
Proc. Int. Conf. on the Safety of Fast Reactors,  
Aix-en-Provence, 19.-22. Sept. 1967
- [16] Becker, A.G., The Effect of Nuclear Radiation on the  
Superheated Liquid State  
Wayne State University, Ph.D., 1963,  
Univ. Microfilms, Inc., Ann Arbor, Mich., No. 68-6613
- [17] Holtz, R.E., Singer, R.M., A Study of the Incipient Boiling  
of Sodium,  
ANL-7608, Oct. 1969
- [18] Marto, P.J., Rohsenow, W.M., Effects of surface conditions on  
nucleate pool boiling of sodium,  
Trans. ASME, Ser. C., Journ. Heat Transfer 88, 1966, No. 2,  
pp. 196-204
- [19] Hoffmann, H.W., Krakoviak, A.I., Convective boiling with liquid  
potassium. Heat Transfer and Fluid Mechanics Institute,  
Univ. of California, Berkeley, 10-12 June 1964, Stanford  
University Press, pp. 19-37
- [20] Shai, I., The mechanism of nucleate pool boiling heat transfer  
to sodium on the criterion for stable boiling,  
MIT, Jan. 1967, DSR 76303-45, Contract No. AI(30-1) 3357, A/3

- [21] Rettig, D., Korrosion von Hüllenmaterialien in flüssigem Natrium (Literaturbericht), Zfk-129, Oktober 1967
- [22] Thorley, A.W., Tyzack, G., Corrosion Behaviour of Steels and Nickel Alloys in High-Temperature Sodium, Symp. on Alkali Metal Coolants, Vienna 1966, Paper SM 85/18
- [23] Borgstedt, H.U., Frees, G., Innere Oxidation als Korrosionserscheinung durch flüssiges Natrium mit sehr geringen Natriumoxidgehalten, KFK 879, EUR 4159 d, Dezember 1968
- [24] Todd, M.I., Turner, S., The Surface Tension of Liquid Sodium and its Wetting Behaviour on Nickel and Stainless Steels, TRG-Report 1459 (R), July 1968
- [25] Achener, P.Y., Alkali Metal Evolution Program, Surface Tension and Contact Angle of Lithium and Sodium, Report No. AGN-8191, Vol. 3, April 1969
- [26] Bradhurst, D.H. et al., Surface Properties of Liquid Sodium and Sodium-Potassium Alloys in Contact with Metal Oxide Surfaces, Aust. J. Chem., 14, pp. 397-408, Aug. 1961
- [27] Wolf, K.L., Physik und Chemie der Grenzflächen, Springer-Verlag Berlin-Göttingen-Heidelberg, 1957, Bd. 1
- [28] Thormeier, K., Die Löslichkeit von Edelgasen im Reaktorkühlmittel Natrium und sich daraus ergebende Sicherheitsaspekte, KFK 1166, Mai 1970
- [29] Tomasetti, G., et al., Experimental means for single and multirods boiling studies, presented at 2. Liquid Metal Boiling Meeting, Casaccia, 9.-10. April 1970
- [30] Schleisiek, K., Heat Transfer and Boiling during forced Convection of Sodium in an Induction Heated Test Tube, (Veröffentlichung in Nucl. Eng. Design) 1970

- [31] Subbotin, V.I., et al., Heat Removal from Reactor Fuel Elements cooled by Liquid Metals, 3. rd Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf 1964, A/CONF/28/P/328
- [32] Institut für Reaktorentwicklung der Ges. f. Kernforschung, Karlsruhe, Seminar über die Technologie des Reaktorkühlmittels Natrium, Oktober 1967 bis Februar 1968  
Externer Bericht 8/68-4, 1968
- [33] Linder, G., Die Dampfblasenentstehung bei Siedevorgängen, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe 1967
- [34] Mehl, G., Untersuchungen zur Blasenverdampfung an künstlichen Oberflächenrauigkeiten, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe 1967
- [35] de la Torre, M., Aktivität des Sauerstoffs in flüssigem Natrium, KFK 1149, Febr. 1970
- [36] Dillmann, H.G., Das Verhalten von Isolierstoffen unter Natrium, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe 1970
- [37] McPherson, R.E., Techniques for Stabilizing Liquid Metal Pool Boiling, Proc. Int. Conf. on the Safety of Fast Reactors, Aix-en-Provence, 19.-22. Sept. 1967
- [38] Kroger, D.G., Rohsenow, W.M., Condensation Heat Transfer in the Presence of a non-condensable Gas, Int. J. Heat Mass Transf., Vol. 11, 1968, pp. 15-26
- [39] Chen, J.C., Incipient Boiling Superheats in Liquid Metals, J. Heat Transfer, Trans. ASME, Ser. C., Vol. 90, No. 3, Aug. 1968, pp. 303-312
- [40] Schultheiß, G.F., Smidt, D., Comments on Incipient Boiling Superheat in Liquid Metals, J. Heat Transfer, Trans. ASME, Ser. C., Vol. 91, No. 1, Feb. 1969, pp. 198-199

- [41] Schultheiß, G.F., Experimentelle Untersuchung des Siedeverzuges von Natrium,  
KFK 964, EUR 4171 d, Abschnitt VIII, April 1969
- [42] Landolt-Börnstein, Springer-Verlag Berlin-Göttingen-Heidelberg,  
6. Auflage
- [43] Bronstein, I.N., Semendjajew, K.A., Taschenbuch der Mathematik,  
Verlag Harri Deutsch, Frankfurt/Main, 3. Auflage, 1962
- [44] Edwards, J.A., Hoffmann, H.W., Superheat with boiling liquid  
metals, ORNL-P-1657, 1965
- [45] Collier, J.G., Kosky, P.G., Natural Convective Boiling of the  
Alkali Metals - A Critical Review, AERE-R 5436, 1967
- [46] Eichelberger, R.L., The Solubility of Oxygen in Liquid  
Sodium: A Recommended Expression, AI - AEC - 12685,  
Nov. 1968
- [47] Brdicka, R., Grundlagen der physikalischen Chemie,  
VEB-Verlag d. Wiss., Berlin, 6. Aufl. 1967
- [48] Anthrop, D.F., The Solubilities of Transition Metals in  
Liquid Alkali and Alkaline Earth Metals, Lanthanium and  
Cesium in a Critical Review of the Literature,  
URCL-50315, TID 4500, Sept. 1967
- [49] Kohlrausch, F., Praktische Physik, Bd. 1,  
O.G. Teubner Verlagsgesellsch., Stuttgart, 1960, S. 26 ff
- [50] Kussmaul, H., persönliche Mitteilung über Meßreihen im  
Institut f. Reaktorbauelemente, Kernforschungszentrum Karlsruhe
- [51] Peppler, W., persönliche Mitteilung, interner Bericht (nicht  
veröffentlicht)

- [52] Edwards, J.A., Hoffman, H.W., Superheat with Boiling Alkali Metals, ANL-7100, Sept. 1965, pp. 515-534
- [53] Spiller, K.H., Perschke, D., Grass, G., Überhitzung und Einzelblasenejektion von stagnierendem Natrium, ATKE 13-41, 1968, pp. 245-251
- [54] Dwyer, O.E., On Incipient-Boiling Wall Superheats in Liquid Metals, Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 12, 1969, pp. 1403-1419
- [55] Basmer, P., Schultheiß, G.F., Eichmessung von Thermoelementen (unveröffentlicht)
- [56] Longson, B., Thorley, A.W., The Wetting Behaviour of some Alloys based on Iron, Nickel and Chromium in Liquid Sodium, The Alkali Metals, Chem. Soc., London, 1967, pp. 153-166
- [57] Jordan, D.O., Lane, J.E., The Wetting of Solid Metals by Liquid Alkali Metals, The Alkali Metals, Chem. Soc., London, 1967, pp. 147-152
- [58] Fa. E.Lybold's Nachf., Vakuumphysik, Vakuumtechnik, Berechnungsgrundlagen, Katalog HV 110, 2. Teil
- [59] Logan, D., Baroczy, C.J., Landoni, A., Morewitz, H.A., Studies of Boiling Initiation for Sodium Flowing in an Heated Channel, AI-AEC-12767, 1969
- [60] Deane, Ch.W.IV, Rohsenow, W.M., Mechanism and Behaviour of Nucleate Boiling Heat Transfer to the Alkali Liquid Metals, Rep. No. DSR 76303-65, MIT, Okt. 1969
- [61] Jansson, S.A., Berkey, E., Oxidation-Reduction Reactions for Chromium and 304 Stainless Steel in Liquid Sodium, vorgetragen auf dem AIME-Meeting, Philadelphia, Okt. 1969, (Veröffentlichung vorgesehen in: Corrosion by Liquid Metals, Plenum Publ. Corp.)

- [62] Borgstedt, H.U., persönliche Mitteilung
- [63] Dwyer, O.E., (Hrsg.), High Temperature Liquid-Metal Technology Review, Vol. 8, No. 1, Feb. 1970, BNL 50236 (PR-43), pp. 13-13
- [64] Isaacs, H.S., Minushkin, B., Salzaus, F.I., A Study of Reactions between Oxygen and Impurities in Sodium, Proc. Int. Conf. on Sodium Technol. and Large Fast Reactor Design, ANL-7520, Part I, Nov. 1968, pp. 460-464
- [65] Claxton, K.T., Contribution on the Solubility of Oxygen in Liquid Sodium, J. Nuclear Energy 1967, Vol. 21, pp. 351-357
- [66] Rutkauskas, V.I., Determination of the Solubility of Oxygen in Sodium Using the Vacuum Distillation Analytical Technique, LA-3879, 1968
- [67] Gast, K., Smidt, D., Cooling Disturbances in the Core of Sodium Cooled Fast Reactors as Causes of Fast Failure Propagation, (Veröffentlichung in Kürze in Nucl. Eng. Design), 1970
- [68] Rallis, C.I., Jawurek, H.H., The Mechanism of Nucleate Boiling, 3. UN Int. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, A/CONF 28/P/600, May 1964.

## 9. Anhang

FØRTRAN-Listen der Programme

NASIEVER

NAVERMES

zur Verarbeitung der Meßdaten sowie aller nötigen SUBRØUTINEN und  
FUNCTIONS.

Alle Erläuterungen über Art der Eingabe und Bedeutung der Symbole  
befinden sich jeweils am Anfang eines Programmes.



```

CN          N A S I E V E R
C
CN          PROGRAMM ZUR AUSWERTUNG VON EXPERIMENTEN ZUM NATRIUMSIEDEVERZUG
C
CA          A.PEE
CA          G.F.SCHULTHEISS
CD          01.08.70
CB          DAS PROGRAMM NASIEVER IST SPEZIELL AUF DIE BEDUERFNISSE DER EXPERI-
CB          MENTAUSWERTUNG ZUM NATRIUMSIEDEVERZUG ZUGESCHNITTEN - DIE GEMAUE
CB          BESCHREIBUNG DER VERSUCHSEINRICHTUNGEN UND DER AUSWERTUNG IST IN
CB          KFK          ENTHALTEN
CB          WEITERE ANWENDUNGSMOEGELICHKEITEN DES PROGRAMMES : BISHER KEINE
CI          BESCHREIBUNG DER EINGABEKARTEN
CI          JEDE VERSUCHSSERIE WIRD DURCH 4 KARTEN MIT GENERELLEN DATEN BEGON-
CI          NEN:
CI          1.KARTE :
CI          SPALTE 01-07  NNVERS  XXXXY  POSITIV,WENN LETZTE ZU RECH-
CI          NENDE SERIE,SONST NEGATIV
CI          VERSUCHSNUMMER
CI          XXXX=NUMMER DES POLYCOMPSTREIFENS
CI          YY=NUMMER DES ZUGEHORIGEN LUMISCRIPSTREIFENS
CI          SPALTE 11-18  DATUM DER VERSUCHSSERIE : XX.YY.ZZ
CI          SPALTE 36-59  TEXT :ALLGEMEINE DATEN UEBER:ART DER HOEHLUNG
CI          ABMESSUNGEN
CI          NATRIUMZUSTAND
CI          BEISPIEL:
CO41002    11.02.69      ZYL 04-08  HOT TRAP NA  0410020000
CI          SPALTE 71-80  KENNZAHL: XXXOYYZZZZ
CI          XXX=POLYCOMPNUMMER
CI          OYY=LUMISCRIPNUMMER
CI          ZZZ=NUMMER DES UNTERSUCHTEN
CI          EREIGNISSES (FALLNUMMER)
CI          2.KARTE :
CI          SPALTE 01-10  PF          IN TORR  AA.AA  FLUESSIGKEITSDRUCK
CI          SPALTE 11-20  PGO         IN TORR  AA.AA  GASDRUCK
CI          SPALTE 21-30  TO          IN GRO C  AAA.A  GASTEMPERATUR V. PGO
CI          SPALTE 71-80  KENNZAHL
CI          3.KARTE :
CI          SPALTE 01-10  MS(1)     IN MV/MM  .BB   MASSSTAB TC34
CI          SPALTE 11-20  MS(2)     IN MV/MM  .BB   MASSSTAB TC22
CI          SPALTE 21-30  MS(3)     IN MV/MM  .BB   MASSSTAB TC23
CI          SPALTE 31-40  L(1)     IN MM     C.C   TIEFE DER HOEHLUNG
CI          SPALTE 41-50  L(2)     IN MM     C.C   POSITION TC22
CI          SPALTE 51-60  L(3)     IN MM     C.C   POSITION TC23
CI          SPALTE 71-80  KENNZAHL
CI          4.KARTE :
CI          SPALTE 01-10  X(1)     IN MM     DD.DD  NULLSTELLE L-KANAL1
CI          SPALTE 11-20  X(2)     IN MM     DD.DD  NULLSTELLE L-KANAL9
CI          SPALTE 21-30  X(3)     IN MM     DD.DD  NULLSTELLE L-KANAL10
CI          SPALTE 71-80  KENNZAHL
C
CI          JEDER UNTERSUCHTE VERSUCHSPUNKT WIRD DURCH 3 DATENKARTEN BESCHRIEBEN
CI          1.KARTE :
CI          SPALTE 01-05  NNFAL     ZZZZ POSITIV,WENN LETZTER ZU RECHNEN-
CI          DER FALL EINER SERIE,SONST NEGA-
CI          TIV
CI          SPALTE 71-80  KENN     KENNZAHL, S.O.

```

```

CI          2.KARTE :
CI          SPALTE 01-10  Y(1)     IN MM     EEE.EE  MESSWERT TE34
CI          SPALTE 11-20  Y(2)     IN MM     EE.EE   MESSWERT TE22
CI          SPALTE 21-30  Y(3)     IN MM     EE.EE   MESSWERT TE23
CI          SPALTE 71-80  KENN     KENNZAHL, S.O.
CI          3.KARTE :
CI          SPALTE 01-10  U(1)     IN MV     FF.FF   THERMOSPANNUNG DAMPF
CI          SPALTE 11-20  U(2)     IN MV     FF.FF   GEGENSPANNUNG TE22
CI          SPALTE 21-30  U(3)     IN MV     FF.FF   GEGENSPANNUNG TE23
CI          SPALTE 71-80  KENN     KENNZAHL, S.O.
C
C          COMMON /EXPERG/ W(3,5000) /RADIUS/ R(5,500)
C
C          REAL MS(3),L(3),LAMBDA
C          INTEGER DATUM(2),TEXT(6)
C          DIMENSION X(3),Y(3),U(3),WERT(3),T(3)
C          INTEGER TP9/10/
C
C          EINLESEN DER WERTE VON DEN FELDERN AUF BAND DV0097
C
C          READ(TP9)W,R
C          REWIND TP9
C
C          EINLESEN DER VERSUCHSWERTE
C
C          10 READ(5,100) NNVERS,DATUM,TEXT,PF,PGO,TO,(MS(I),I=1,3),(L(I),I=1,3)
C          1,(X(I),I=1,3)
C          NVERS=IABS(NNVERS)
C
C          AUSDRUCKEN VON VERSUCHSWERTE
C
C          WRITE (6,102)NNVERS,DATUM,TEXT,PF,PGO,TO,(MS(I),I=1,3),(L(I),I=1,3)
C          1,(X(I),I=1,3)
C
C          EINLESEN DER FALLWERTE
C
C          20 READ(5,101) NNFAL,(Y(I),I=1,3),(U(I),I=1,3),KENN,NUM
C          NFAL=IABS(NNFAL)
C
C          W(3,NFAL)=KENN
C
C          DO 1 I=1,3
C          1 WERT(I)=(Y(I)-X(I))*MS(I)
C          WERT(2)=WERT(2)+U(2)
C          WERT(3)=WERT(3)+U(3)
C          DO 2 I=1,3
C          2 T(I)=TNICRO(WERT(I))
C          TD=TNICRO(U(1))
C          PG=PGO
C
C          IF (PGO.EQ.0.) GO TO 3
C
C          TDK=TD+273.16
C          TOK=TO+273.16
C          PG=PGO*(TDK/TOK)

```

```

3 TS=TVAPNA(PVAPNA(TD)+(PF+PG)*133.3224)
DL23=L(2)-L(3)
VERH=(L(3)-L(1))/DL23
DT23=T(2)-T(3)
TB=T(3)-DT23*VERH
DELTTU=TB-TS
TW=T(3)+DT23*0.5
LAMBDA=14.1+(TW-100.)*16.9905E-3
Q=(LAMBDA/(DL23*1.E-3))*DT23*1.E-4
W(1,NFAL)=TS
W(2,NFAL)=DELTTU
C
C AUSGABE DER FALLERGEBNISSE
C
C WRITE (6,103) NFAL,T(1),TD,T(2),T(3),TB,TS,DELTTU,Q,KENN,NUM
C
C IF {NNFAL.LT.0} GO TO 20
C
C IF {NNVERS.LT.0} GO TO 10
C
C CALL FELDER
C
C STOP
C
C 100 FORMAT(I7,3X,2A4,17X,6A4/3F10.4/(6F10.4))
C
C 101 FORMAT(I5/3F10.4/3F10.4,40X,I6,I4)
C
C 102 FORMAT(T1,'1VERSUCH NR.',I7,T41,'DATUM',2X,2A4,30X,6A4///T1,' PF =
1',F10.4,T17,'TORR'/T1,' PG =' ,F10.4,T17,'TORR'/T1,' TO =' ,F10.4,T
217,'GRAD CELSIUS'//T1,' MASSSTAEBE',3F10.4,T45,'DIMENSION MV/MM '/
3/T1,' ABSTAENDE ',3F10.4,T45,'DIMENSION MM'///T1,' NULLSTELLEN',F9
4.4,2F10.4,T45,'DIMENSION MM'///T1,'OFALL NR. TC34
5 TVAP TC22 TC23 T BODEN TSAT DE
6LTA TUE Q '//T1,'
7 GRD C GRD C GRD C GRD C GRD C
8 W/CM2 '////)
C
C 103 FORMAT(1H0,I7,8X,2F10.4,5X,2F10.4,5X,2F10.4,5X,F10.4,5X,F10.4,5X,I
16,2X,I4)
END

FUNCTION TNICRO (SP)
DIMENSION V(20),TE(20)
DATA V/0.0,1.20,5.33,9.34,13.88,18.51,25.34,29.14,32.48,35.75,
1 39.75,42.87,46.29,48.89,51.41,52.46/,
2 TE/0.0,30.0,130.0,230.0,340.0,450.0,610.0,700.0,780.0,860.0,
3 960.0,1040.0,1130.0,1200.0,1270.0,1300.0/,NP/6/
KA = 2
IF (SP.LT.0.0) GO TO 50
IF (SP.GT.52.46) GO TO 60
IF (SP.GE.29.14) KA = 8
DO 20 K = KA,16
IF (SP.LE.V(K)) GO TO 30
20 CONTINUE
30 DV = V(K) - V(K-1)
DT =TE(K) -TE(K-1)
TNICRO =TE(K-1) + (SP-V(K-1))* (DT/DV)
RETURN
50 WRITE (NP,51) SP
TNICRO = 0.
51 FORMAT (1H ,3HSP=,F8.2,17HSPANNUNG NEGATIV /)
RETURN
60 WRITE (NP,61) SP
TNICRO = 1300.
61 FORMAT (1H ,3HSP=,F8.2,35H T>1300 GRAD,CHECK KOMMA STELLUNG /)
RETURN
END

```

```

SUBROUTINE FELDER
C
COMMON /EXPERG/ W(3,5000) /RADIUS/ R(5,500)
INTEGER TP9/10/
C
C AUSGABE ALLER WERTE
C
C WRITE (TP9) W,R
C END FILE TP9
C REWIND TP9
C
C WRITE (6,100)
C L=0
C DO 10 I=1,5000
C IF(W(1,I).EQ.0.) GO TO 10
C L=L+1
C KENN=W(3,I)
C WRITE (6,101) I,W(1,I),W(2,I),KENN,L
10 CONTINUE
C
C WRITE (6,102)
C NR=1
C DO 11 NR=1,500
C IF (R(4,NR).EQ.0.) GO TO 11
C WRITE (6,103) R(1,NR),R(2,NR),R(3,NR),R(4,NR),R(5,NR),NR
11 CONTINUE
C
C 100 FORMAT(T1,'INHALT DES FELDES EXPERG BAND DV0097'///T1,' NFAL
1 TSAT',10X,'DELT TUE',6X,'KENNZIFFER',2X,'WERTEANZAHL'//)
C
C 101 FORMAT(I5,2(5X,F10.4),12X,I10,5X,I5)
C
C 102 FORMAT ('1INHALT DES FELDES RADIUS BAND DV0097 '////
1 KALTFALLENTemperatur',6X,'DURCHMESSER',3X,'TIEFE',6X,'MITTLERER'//
233X,'DER BOHRUNG',12X,'RADIUS',9X,'QUOTE ',5X,'NR',
3//17X,'GRD C',7X,'*0.1 MM',3X,'*0.1 MM',13X,'MM', '////////)
C
C 103 FORMAT (17X,F5.0,5X,F5.0,5X,F5.0,10X,F10.6,5X,F10.4,4X,I3/)
C
C RETURN
C
C END

```

```

CN          N A V E R M E S
C
CN          PROGRAMM ZUR BERECHNUNG DER MITTELWERTE DER KEIMRADIEN F. NASIEVER
C
CA          A.PEE
CA          G.F.SCHULTHEISS
CA          P.BASMER
CD          01.10.70
CB          DAS PROGRAMM NADIARAD IST SPEZIELL FUER DIE WEITERVERARBEITUNG DER
CB          ERGEBNISSE VON NASIEVER ZUGESCHNITTEN. DIE GENAUE BESCHREIBUNG
CB          DER AUSWERTUNG IST IN KFK ENTHALTEN.
CB          WEITERE ANWENDUNGSMOEGlichkeiten DES PROGRAMMES: BISHER KEINE
CI          BESCHREIBUNG DER EINGABEKARTEN:
CI          JEDE AUSGEWERTETE VERSUCHSSERIE WIRD DURCH EINE KARTE MIT GENEREL-
CI          LEN DATEN BEGONNEN.
CI          1.KARTE:
CI          SPALTE 01-05   NP=ANZAHL DER AUSGEWERTETEN VERSUCHE,NP<=200
CI          SPALTE 06-10   K=KALTFALLENTemperatur IN GRAD CELSIUS
CI          K=0: HOT TRAP GEREINIGTES NA
CI          SPALTE 11-15  PHI=DURCHMESSER DER HOEHLUNG
CI          SPALTE 16-20  TIEFE=TIEFE DER HOEHLUNG
CI          SPALTE 21-25  NR=NUMMER DER AUSGEWERTETEN VERSUCHSSERIE
C
CI          BEISPIEL:
C 6 127 04 C8 87
CI          6 VERSUCHSPUNKTE(FAELE) - 127 GRAD CELSIUS KALTFALLENTemper-
CI          ATUR - 0.4 MM HOEHLUNGSDURCHMESSER - 0.8 MM HOEHLUNGSTIEFE -
CI          87STE VERSUCHSSERIE
C
CI          DIE VON NASIEVER UNTERSUCHTEN VERSUCHSPUNKTE (FAELLE), DIE NUN
CI          FUER NADIARAD ALS EINGABE DIENEN SOLLN, WERDEN DURCH IHRE (IN NA-
CI          SIEVER GENERIERTEN) FALL-NUMMERN IN WEITERE EINGABEKARTEN FEST -
CI          GELEGT.
CI          FUER JEDE FALL-NR IST EIN 5-STELLIGES FELD AUF DIESEN EINGABEKAR-
CI          TEN VORGEGEHEN, ALSO MAXIMAL 16 FALLNUMMERN PRO KARTE.
C
CI          BEISPIEL:
C2263 2225 2265 2666 2268
CI          XXXX = FALL-NUMMERN
C
C
COMMON /EXPERG/ W(3,5000) /RADIUS/ R(5,500)
DIMENSION RZ(200),EPSR(200),EPROZ(200)
INTEGER TP9/10/,PHI,TIEFE,NFAL(200)
READ (TP9) W,R
REWIND TP9
C
C          EINLESEN DER FAELE DIE AUSGEWERTET WERDEN
C
20 READ (5,100) NP,K,PHI,TIEFE,NR
IF (NP.LE.1) GO TO 50
READ (5,101) (NFAL(I),I=1,NP)
RQ=0.
SNP=NP
SPHI=PHI

```

```

C          BERECHNUNG DES ARITHMETISCHEN MITTELS RQ DER KEIMRADIEN
C          DER ABWEICHUNG EPSR VOM MITTELWERT RQ
C          DES EINFACHEN MITTLEREN FEHLERS ETAR
C          DER STREUUNG SIGR AUS EPSR
C          DER STREUUNG SIGE AUS ETAR
C          DER DIFFERENZ DER STREUUNGEN /SIGR - SIGE/
C
DO 1 I=1,NP
J=NFAL(I)
TGES=W(1,J)+W(2,J)
RZ(I)=(2.*SFTNA(TGES))/(PVAPNA(TGES)-PVAPNA(W(1,J)))*1000.
1 RQ=RQ+RZ(I)
RQ=RQ/SNP
EPSR2=0.
SBEPSR=0.
C
DO 2 I=1,NP
EPSR(I)=RQ-RZ(I)
EPROZ(I)=100.*EPSR(I)/RQ
EPSR2=EPSR2+EPSR(I)*EPSR(I)
2 SBEPSR=SBEPSR+ABS(EPSR(I))
C
FAKTOR=20.*RQ/SPHI
QUOTE=1./FAKTOR
SIGR=SQRT(EPSR2/(SNP-1.))
XNP=SNP*(SNP-1.)
ETAR=SBEPSR/SQRT(XNP)
PROZET=100.*ETAR/RQ
SIGE=ETAR*1.2533
DIFSIG=ABS(SIGR-SIGE)
PRODIF=100.*DIFSIG/SIGR
RMAX=RQ+2*SIGR
RMIN=RQ-2*SIGR
C
C          AUSDRUCKEN DER ERGEBNISSE
C
WRITE (6,103) NR,K,PHI,TIEFE
DO 3 I=1,NP
J=NFAL(I)
KENN=W(3,J)
3 WRITE (6,104) I,J,W(1,J),W(2,J),RZ(I),EPSR(I),EPROZ(I),KENN
WRITE(6,105) RQ,FAKTOR,QUOTE,ETAR,PROZET,SIGR,SIGE,DIFSIG,PRODIF
C
R(1,NR)=K
R(2,NR)=PHI
R(3,NR)=TIEFE
R(4,NR)=RQ
R(5,NR)=QUOTE
CALL MITTEL (R(2,NR)*0.05,R(4,NR),1)
CALL MITTEL (RMAX,RMIN,0)
GO TO 20
C
C          AUSDRUCKEN DER FELDIHALTE
C
C          EINLESEN DES W - UND R - FELDES AUF BAND DV0097
C

```

